Когерентное электронно-дырочное состояние и фемтосекундное кооперативное излучение в объёмном GaAs

П.П.Васильев*, Х.Кан**, Х.Ота**, Т.Хирума**

Обсуждаются условия получения коллективного когерентного электронно-дырочного состояния в полупроводниках. Приведены результаты экспериментального исследования режима кооперативной рекомбинации электронов и дырок высокой плотности (свыше 3×10^{18} см⁻³) в объёмном GaAs при комнатной температуре. Показано, что коллективное спаривание электронов и дырок и их конденсация вызывают образование короткоживущего когерентного электронно-дырочного БКШ-подобного состояния, излучательная рекомбинация которого наблюдается в виде мощных фемтосекундных оптических импульсов. Экспериментально продемонстрировано, что практически все электроны и дырки сконденсированы на дно зон и находятся в кооперативном состоянии. Измерено среднее время жизни этого состояния (около 300 фс), получены зависимости параметра порядка (энергетической щели в спектре электронов и дырок) и энергии Ферми когерентного электронно-дырочного БКШ-состояния от концентрации е -h-пар.

Ключевые слова: бозе-конденсат, когерентное состояние, ультракороткие импульсы света, полупроводниковый лазер.

1. Введение

Системы электронов и дырок в полупроводниках и их взаимодействие с резонансными электромагнитными полями уже давно являются одними из наиболее важных и интересных областей исследований физики конденсированного состояния [1-3]. Одна из замечательных особенностей таких систем заключается в их способности при определённых условиях образовывать макроскопические квантовые состояния. Например, в зависимости от плотности электронов и дырок макроскопическое квантовое состояние может быть бозе-эйнштейновским конденсатом экситонов (режим низкой плотности) или кооперативным электронно-дырочным состоянием, похожим на коллективное состояние куперовских пар в сверхпроводнике (БКШ-состояние, режим большой плотности) [3]. Квантоворазмерные полупроводниковые структуры и структуры в микрорезонаторах, возбуждаемые внешним когерентным оптическим полем, обычно рассматриваются как основные кандидаты для наблюдения макроскопических квантовых состояний [4-7].

Одним из ключевых моментов образования бозеконденсата является процесс спаривания электронов и дырок с образованием либо одиночных связанных состояний (экситонов), либо кооперативного состояния в режиме большой плотности (коллективное спаривание). Такое когерентное кооперативное состояние ансамбля электронов и дырок часто называют электронно-дырочным БКШ-состоянием [3]. Процессу спаривания часто способствует присутствие резонансного внутреннего или внешнего электромагнитного (светового) поля.

Поступила в редакцию 28 июня 2002 г.

Однако в отличие от бозе-конденсата, получаемого в атомных ловушках, и от БКШ-состояний куперовских пар в сверхпроводниках любое кооперативное состояние электронов и дырок в полупроводниках должно быть принципиально нестабильным из-за их рекомбинации. Очевидно, что коллективный распад когерентного электронно-дырочного состояния должен обладать свойствами сверхизлучения.

В ряде наших предыдущих работ [8-11] исследовался режим сверхизлучения в системе электронов и дырок высокой плотности, где впервые был обнаружен режим когерентного взаимодействия оптического поля с активной полупроводниковой средой и продемонстрировано, как сильное оптическое усиление в среде может преодолеть деструктивную роль фазовой релаксации. Более того, нами было показано, что свойства кооперативного излучения могут быть объяснены конденсацией е – h- пар и образованием нестационарного когерентного БКШподобного электронно-дырочного состояния при комнатной температуре [12-14]. Были определены основные параметры этого состояния, в частности был оценён параметр порядка Δ .

В настоящей работе мы обобщаем имеющиеся экспериментальные данные, опубликованные ранее, и приводим ряд новых результатов по исследованию когерентного кооперативного электронно-дырочного состояния в объёмном GaAs.

2. Условия конденсации электроннодырочных пар

Хорошо известно, что в отличие от электронов или дырок, являющихся фермионами, связанные электрон и дырка (экситон) представляют собой бозон (по крайней мере, в первом приближении). Следовательно, ансамбль экситонов должен в определенных условиях испытывать бозе-конденсацию. Конденсация экситонов действительно наблюдалась при очень низких температурах и низких плотностях в случае оптической накачки Cu₂O [4] и при

^{*}Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: peter@mail1.lebedev.ru

^{**}H.Kan, H.Ohta, T.Hiruma Central Research Laboratory, Hamamatsu Photonics K.K., 5000 Hirakuchi, Hamakita City, 434 Japan

пикосекундном оптическом возбуждении квантоворазмерных структур GaAs/AlGaAs [15].

Поскольку электрон и дырка имеют противоположные электрические заряды и между ними действуют кулоновские силы притяжения, они могут спариваться спонтанно, без участия какого-либо дополнительного физического механизма. Это отличает е – h-пары от куперовских пар, где притяжение между электронами обусловлено взаимодействием с фононами. Однако стоит отметить, что в нашем случае огромную роль при спаривании электронов и дырок и установлении когерентности в ансамбле должно играть резонансное оптическое поле, постоянно присутствующее в системе за счет их рекомбинации.

Процесс спаривания и образования когерентного ансамбля электронов и дырок иллюстрирует рис.1. Пусть вначале имеются электрон и дырка, не связанные друг с другом, и фотон. Источником электронов и дырок является сильная накачка полупроводника импульсами тока (см. разд.3). Фотоны постоянно образуются в результате излучательной рекомбинации электронов и дырок. Фотон может вызвать рекомбинацию е-h-пары с образованием другого фотона, абсолютно идентичного начальному. Таким образом, в промежуточной фазе мы имеем два когерентных фотона. Существует и обратный процесс – образование е-h-пары из фотона. Поэтому в заключительной фазе присутствуют фотон и связанные электрон и дырка, когерентные с полем.

Благодаря малости импульса фотона по сравнению с импульсом электронов и дырок, поле рождает е – h-пары с суммарным импульсом, равным нулю. Таким образом, при наведении корреляций электромагнитным полем в электронно-дырочной системе на начальной стадии развития из всех электронов и дырок возникает когерентный ансамбль частиц (кооперативное состояние), суммарный импульс которого равен нулю. Из-за экспоненциального нарастания фазирующего когерентного поля к концам структуры кооперативное состояние сильно неоднородно в пространстве. Оно преимущественно расположено у обеих граней кристалла. Очевидно, что установлению когерентности препятствуют соударения между частицами, и этот аспект мы обсудим в дальнейшем.

Теперь выясним, при каких условиях возможна конденсация e-h-пар. Система электронов и дырок с концентрацией *n* переходит в конденсированное состояние, когда выполнен так называемый критерий квантового вырождения [3]

$$n\lambda_{\rm D}^3 > 1,\tag{1}$$

где $\lambda_{\rm D} = (2\pi\hbar^2/MkT)^{1/2}$ – длина волны де Бройля; M – масса е – h-пары. В объёмном GaAs имеем для электронов $m_{\rm e} = 0.07$, для тяжёлых дырок $m_{\rm hh} = 0.5$, для лёгких дырок $m_{\rm lh} = 0.08$ (в единицах массы свободного электрона). При комнатной температуре $\lambda_{\rm D}$ составляет около



Рис.1. Спаривание электрона и дырки при участии фотона.

107 и 60 Å для пары электрон – лёгкая дырка и электрон – тяжёлая дырка соответственно. Как видно из формулы (1), увеличение концентрации ослабляет требования, предъявляемые к температуре наблюдения конденсации. Если предположить, что пара электрон – дырка является идеальным бозоном, то точное значение температуры конденсации находится из следующего соотно-

$$n\left(\frac{2\pi\hbar^2}{MkT}\right)^{3/2} = 2.612.$$
 (2)

шения [16]:

На рис.2 показаны зависимости температуры конденсации от концентрации е-h-пар для различных значений массы пары. Очевидно, что для достижения конденсации при комнатной температуре требуется всё более и более высокая плотность е-h-пар при увеличении массы пары. Как видно из рис.2, для достижения конденсации при комнатной температуре в GaAs в ансамбле пар электрон – лёгкая дырка требуется $n \approx 2.4 \times 10^{18}$ см⁻³. В наших экспериментах [8,9] благодаря специальной геометрии структур и оригинальному способу накачки удалось достичь очень высокой плотности электронов и дырок - $(2-6) \times 10^{18}$ см⁻³. При таких плотностях е-h-пар среднее расстояние между частицами $r_s = (3/4\pi n)^{1/3}$ составляет от 49 до 34 Å, что меньше длины волны де Бройля, рассчитанной выше. Таким образом, длины волн де Бройля отдельных пар перекрываются в пространстве, и мы вправе ожидать наступления конденсации в ансамбле пар электронов и дырок.

В нашем случае больших плотностей и комнатных температур ($kT \approx 25$ мэВ) речь об экситонах не идет (энергия связи экситона в объёмном GaAs составляет около 4 мэВ, радиус экситона a_0 – около 140 Å). Поэтому когерентное состояние спаренных электронов и дырок должно быть похожим на состояние ансамбля электронов в сверхпроводнике, когда характерный размер куперовских пар во много раз превышает среднее расстояние между электронами (пары сильно перекрыты в пространстве). Коллективный излучательный распад этого когерентного е – h-ансамбля и наблюдается экспериментально в виде мощного фемтосекундного импульса [12, 13]. Следует подчеркнуть, что переход системы в когерентное



Рис.2. Зависимости температуры конденсации от плотности e-h-пар для различных значений эффективной массы пары M (в единицах массы свободного электрона).

состояние должен быть скачкообразным, поскольку, как только ближайшие е – h-пары фазируются, они своим суммарным кулоновским полем поляризуют остальные частицы, заставляя их переходить в когерентное состояние. Таким образом, если пары электрон – лёгкая дырка перешли в кооперативное состояние (а для них критическая температура при той же концентрации гораздо ниже), то они могут способствовать переходу в это состояние и пар электрон – тяжёлая дырка.

3. Динамика формирования когерентного состояния и его временные характеристики

В экспериментах использовались трёхсекционные полупроводниковые лазерные структуры на основе p - i - n-гетероструктуры GaAs/AlGaAs (рис.3,*a*), аналогичные описанным ранее (все детали экспериментальной установки могут быть найдены в публикациях [8, 9, 12, 13]). Накачка структур осуществлялась наносекундными импульсами тока с амплитудой до 1 А.

В зависимости от способа и параметров накачки в полупроводниковых структурах возможны три вида генерации, которые качественно и количественно отличаются друг от друга. При однородной инжекции тока во все секции структуры наблюдается лазерная генерация. При отключении центральной секции от источника тока или при подаче на неё запирающего напряжения небольшой амплитуды (1–3 В) возникает пассивная модуляция добротности, давно исследованная и подробно описанная в литературе (см., напр., [17]). При этом выходные оптические импульсы в режиме модуляции добротности имеют типичную длительность 10 пс и более и пиковую мощность порядка 1 Вт.

При недостаточно большой амплитуде импульсов накачки в усилительные секции структуры или при очень большом запирающем напряжении на центральной секции наблюдается режим усиленного спонтанного излучения. При этом мощность выходного излучения мала (десятки и сотни микроватт), а во временной области генерируется длинный оптический импульс наносекундной длительности.

Наконец, третий, и наиболее интересный случай – это режим кооперативной рекомбинации е – h-пар, впервые описанный в [8, 9]. Нами исследовалась спектральная динамика формирования электронно-дырочного БКШ-состояния с помощью спектрохронограмм излучения полупроводниковых структур, регистрируемых электроннооптической камерой с линейной развёрткой и временным разрешением около 1.5 пс. На рис.3,6,6 представлены типичные спектрохронограммы обычного лазерного излу-



Рис.3. Фотография под микроскопом трёхсекционной лазерной структуры (*a*) и спектрохронограммы лазерной генерации (*б*) и импульсов кооперативного излучения (*в*), снятые с экрана электронно-оптической камеры. Стрелками показаны положения центров спектров линий лазерной генерации, кооперативного и спонтанного излучения и соответствующие значения энергии фотона.

чения и импульсов кооперативной рекомбинации. В начале лазерной генерации (рис.3, δ) наблюдаются релаксационные осцилляции интенсивности (3–4 импульса на фронте трека), что типично для полупроводниковых лазеров. Отметим, что трек достаточно узок (это говорит об узости спектра), и его центр расположен практически на одном месте по оси частот, т.е. за время генерации центральная частота меняется незначительно. Пик спектра имеет энергию ~1.424 эВ, которая была измерена с помощью дифракционного спектрометра.

Совершенно другая картина наблюдается в режиме, когда формируется электронно-дырочное БКШ-состояние и генерируются фемтосекундные импульсы кооперативного излучения (рис.3, в). Широкая вертикальная полоса соответствует обычному спонтанному излучению e-h-пар, не связанных между собой, а яркое пятно слева в центре фотографии – мощному импульсу кооперативного излучения в результате рекомбинации БКШсостояния. Поскольку пиковая мощность импульса сверхизлучения обычно в 10⁴-10⁵ раз превышает мощность спонтанного фона, изображение импульса на картинке деформировано из-за переэкспозиции. Хорошо видно, как возникает кооперативный импульс из спонтанного излучения. В процессе роста плотности носителей под действием наносекундного импульса тока происходит сужение запрещённой зоны, и спонтанная рекомбинация электронов и дырок происходит при всё более и более низких энергиях фотонов. Когда плотность e-h-пар становится достаточно большой, начинается перекрытие длин волн де Бройля отдельных пар, и выполняется критерий (1). В этот момент и формируется электроннодырочное БКШ-состояние. Установление общей фазы волновых функций отдельных пар происходит через общее оптическое поле. На самом начальном этапе развития кооперативного импульса возникает макроскопическая поляризация среды, являющаяся характерной особенностью сверхизлучения (подробнее см. рисунки в статье [10]).

Возможно, наиболее интересной особенностью рис. 3, в является тёмная горизонтальная полоса, идущая поперёк спонтанного излучения в момент образования и рекомбинации электронно-дырочного БКШ-состояния. Она означает отсутствие спонтанного излучения в этот момент времени, т.е. отсутствие внутри зон электронов и дырок, которые могли бы рекомбинировать спонтанным образом. Другими словами, в этот момент практически все электроны и дырки конденсируются на самом дне зон и принимают участие в кооперативном состоянии. В результате рекомбинации этого состояния излучаются фотоны с минимально возможной энергией. В данном случае энергия центра линии кооперативного излучения составляет около 1.396 эВ, тогда как пик спонтанного излучения находится на 1.451 эВ. Напомним, что ширина неперенормированной запрещённой зоны в GaAs при комнатной температуре соответствует энергии кванта 1.424 эВ.

Для подтверждения этого важного факта была измерена общая интенсивность спонтанного излучения при рекомбинации электронов и дырок, занимающих энергетические уровни внутри зон, и построена её зависимость от времени (рис.4). Видно, что в момент рекомбинации электронно-дырочного БКШ-состояния интенсивность спонтанного излучения практически достигает нуля (отмечено стрелкой).



Рис.4. Зависимость интенсивности спонтанного излучения от времени. Стрелкой показано положение импульса сверхизлучения.

Такого рода спектральная динамика существенно отличается от динамики спонтанного излучения и лазерной генерации. Действительно, при возникновении лазерного излучения в полупроводниковой среде интенсивность спонтанного излучения во всем спектральном диапазоне фиксируется на пороговом уровне. Из-за сверхмалого времени внутризонной релаксации в полупроводнике практически невозможно выжечь спектральную «дырку» в энергетическом распределении электронов и дырок и уменьшить спонтанное излучение вокруг линии генерации, а тем более на удалённых энергетических уровнях. Как известно, когерентность отдельных e-h-пар в полупроводниковых лазерах разрушается за времена 10-100 фс. В результате этого в типичных условиях лазерной генерации отношение числа фотонов к числу е-hпар $N_{\rm ph}/N_{\rm e-h}\simeq 10^{-4}-10^{-5}$ [18]. С другой стороны, в условиях когерентного кооперативного состояния оптическое поле линейно связано с параметром порядка, и мы имеем $N_{\rm ph}/N_{\rm e-h} \simeq 1$. Это означает, что сразу после рекомбинации электронно-дырочного БКШ-состояния число e-h-пар, оставшихся в структуре, должно быть весьма мало. Это как раз и наблюдается в эксперименте в виде тёмной полосы (рис.3, в). В дальнейшем интенсивность спонтанного излучения снова начинает расти за счёт инжекции новых электронов и дырок импульсом тока накачки.

Точные измерения длительности импульсов коопера-



Рис.5. Типичные огибающие импульсов кооперативного излучения, зарегистрированные электронно-оптической камерой.

тивного излучения были проведены с помощью как электронно-оптической камеры, так и автокорреляционной методики при ГВГ. На рис.5 показаны две типичные огибающие импульсов кооперативной рекомбинации, зарегистрированные электронно-оптической камерой. Длительность импульсов на экране камеры очень близка к её временному разрешению (1.5 пс), что соответствует истинной длительности импульсов менее 1 пс. Видно, что основной фемтосекундный импульс располагается на пьедестале длительностью около 10 пс, происхождение которого требует дополнительного исследования.

Для более точного измерения длительности кооперативного излучения использовалась методика получения автокорреляционных функций интенсивности, имеющая фемтосекундное временное разрешение. На рис.6 показана типичная автокорреляционная функция второго порядка импульсов сверхизлучения (зависимость интенсивности ГВГ от задержки между импульсами в сканирующем интерферометре Майкельсона). Она имеет полную ширину на половине амплитуды около 460 фс, что соответствует истинной длительности импульсов в пределах от 290 фс (для асимметричной экспоненциальной формы огибающей) до 320 фс (для гауссовой формы) [17]. Согласно теории сверхизлучения [19, 20], форма импульсов далека от гауссовой и близка, скорее, к асимметричной экспоненциальной, т.е. истинная длительность составляет менее 300 фс. Стоит подчеркнуть, что достигнутая длительность импульсов сверхизлучения является абсолютным рекордом для длительности ультракоротких импульсов, генерируемых полупроводниковыми лазерами (без сжатия внешними оптическими элементами).

Отметим, что существует дополнительный пьедестал длительностью 1.5–2.0 пс, на котором расположен основной фемтосекундный импульс. Его наличие, по-видимому, связано с фундаментальными квантово-механическими флуктуациями в системе электронно-дырочные пары – фотоны и с неопределенностью начальной фазы при распаде БКШ-состояния. Эти обстоятельства приводят к большим флуктуациям формы импульсов сверхизлучения.

Действительно, как показано в [5], появление сильного шума является убедительным доказательством конденсации и установления когерентности в системе е – hпар. Как хорошо известно из статистической физики,



Рис.6. Автокорреляционная функция интенсивности импульсов кооперативного излучения.

амплитуда шума обратно пропорциональна числу статистически независимых параметров системы. Таким образом, экспериментально наблюдаемый большой шум (флуктуации формы, длительности, огромная нестабильность моментов появления импульсов) является очевидным признаком того, что число независимых переменных сильно сокращается при появлении макроскопической области когерентности, где и сосредоточено электронно-дырочное БКШ-состояние. Заметим, что во всех других импульсных режимах работы лазерной структуры (синхронизация мод, модуляция добротности и т.п.), где фундаментальные квантово-механические флуктуации не проявляются явным образом, генерируются импульсы без пьедестала, показанного на рис.6.

Теперь остановимся на когерентных свойствах кооперативного состояния и излучения. Известно, что рассеяние куперовских пар друг на друге не ведёт к потере когерентности в ансамбле [21]. В нашем случае кооперативного e-h-состояния мы имеем схожую ситуацию. Экспериментально было обнаружено сохранение когерентных свойств взаимодействия электронов и дырок с оптическим полем в течение аномально большого времени, многократно превышающего время поперечной релаксации T_2 (менее 100 фс) [8, 9]. Более того, классический случай сверхизлучения должен был бы наблюдаться на временах, заведомо меньших 100 фс [19, 20]. Экспериментально наблюдавшиеся когерентные биения с частотой более 1 ТГц, длившиеся несколько пикосекунд [8], говорят в пользу того, что в коллективном состоянии когерентность сохраняется в течение нескольких сотен фемтосекунд, хотя время между соударениями частиц в ансамбле составляет менее 10 фс. В отличие от автокорреляционных функций интенсивности (рис.6), где вся фазовая информация излучения отсутствует из-за усреднения, интерферограммы, снятые с разрешением отдельных колец и фемтосекундной погрешностью, позволяют проследить за фазовыми соотношениями излучения.

На рис.7 показана экспериментально полученная интерферограмма импульсов кооперативного излучения, генерируемых полупроводниковой структурой, где две секции с высокой плотностью e-h-пар расположены близко друг к другу (на расстоянии менее 10 мкм).



Рис.7. Интерферограмма импульсов кооперативного излучения, иллюстрирующая когерентность взаимодействия оптического поля с е – h-парами, находящимися в кооперативном состоянии.

Общая длина структуры соответствует двукратному времени прохождения света от грани до грани кристалла (~3.1 пс). Хорошо видны когерентные биения оптического поля. Форма кривой похожа на биения двух когерентных осцилляторов и предполагает когерентное взаимодействие излучения с различными частями кооперативного состояния при распространении импульса между гранями кристалла.

Это может быть объяснено тем, что при рассеянии друг на друге электронов и дырок, находящихся в кооперативном состоянии, потери когерентности не происходит. При соударении же с внешними электронами и дырками, не входящими в кооперативное состояние, когерентность ансамбля также сохраняется, поскольку, повидимому, коллективное состояние воспринимает удар как целое, как своего рода огромная молекула. Посколько число электронов и дырок в кооперативном состоянии очень велико (около 108 [9]) и суммарная масса многократно превосходит массу отдельного электрона (дырки), то при взаимодействии когерентность ансамбля практически не меняется. Другими словами, время фазовой релаксации когерентного ансамбля должно быть больше времени T_2 и должно расти с увеличением числа частиц.

4. Спектральные характеристики излучения

Как было отмечено в разд.3, в зависимости от режима возбуждения секций лазера наряду с кооперативным излучением наблюдались лазерная генерация и усиленное спонтанное излучение. На рис.8 показаны типичные спектры лазерной генерации и усиленного спонтанного излучения. На рис.8, а хорошо различимы продольные моды резонатора, образованные гранями кристалла. Центр линии излучения находится вблизи энергии фотона 1.424 эВ $(\lambda = 872 \text{ нм})$. Во временной области наблюдаются релаксационные осцилляции интенсивности, предшествующие выходу излучения на стационарный уровень (см. рис.3, δ). Спектр усиленного спонтанного излучения показан на рис.8,6, он очень широк, а его максимум расположен вблизи энергии фотона 1.45 эВ ($\lambda = 857$ нм), что совпадает со спектральным максимумом линии спонтанного излучения, полученным с помощью электронно-оптической камеры (см. рис.3,в).

На рис.9 представлены типичные оптические спектры импульсов сверхизлучения, достигнутые при различных уровнях накачки в лазерной структуре. Абсолютная величина запирающего напряжения на поглощающей области структуры увеличивается от 4.7 до 7.0 В. Отметим, что при напряжениях ниже –4.2 В режим сверхизлучения менее выражен и сопровождается лазерной генерацией, а с приближением напряжения к нулю он вообще исчезает и имеет место лишь лазерная генерация. Спектр импульсов кооперативного излучения сплошной, и на рис.9 отчетливо видно, как его центр смещается в длинноволновую область, а ширина уменьшается. Минимальная энергия фотона центра спектра составляет 1.397 эВ, а длинноволнового края –1.380 эВ.

Смещение линии кооперативного излучения в длинноволновую область с ростом запирающего напряжения может быть обусловлено следующим. При увеличении напряжения на центральной секции образца край поглощения этой области полупроводника смещается в длинноволновую область спектра (эффект Франца – Келды-



Рис.8. Типичные спектры лазерной генерации (a) и усиленного спонтанного излучения (δ), наблюдаемых в исследовавшихся структурах.

ша). Для спаривания электронов и дырок и возникновения когерентного БКШ-состояния в усиливающих секциях структуры необходимо «затравочное» фазирующее когерентное поле, способное беспрепятственно распространяться через эти области. А это как раз и возможно при повышении концентрации носителей, когда за счёт заполнения ими зон ширина запрещённой зоны в усилительных секциях образца уменьшается. При этом излучение, исходящее из самого края зоны, находится за границей длинноволнового поглощения центрального участка структуры.

5. Определение параметров кооперативного состояния

Для получения информации о параметрах когерентного электронно-дырочного БКШ-состояния мы вос-



Рис.9. Спектры кооперативного излучения при различных значениях запирающего напряжения на поглощающей секции структуры.

пользовались методикой аппроксимации спектров кооперативной рекомбинации, подробно описанной в [12, 13]. Спектры кооперативной рекомбинации $I(\hbar\omega)$ хорошо описываются простой свёрткой плотности состояний $\rho(E)$ фермиевских квазичастиц, полученных каноническим преобразованием Боголюбова [1, 2], и функции заполнения квазичастиц $v^2(E)$ согласно формуле

$$I(\hbar\omega) = I_0 \int_{E'_g}^{\hbar\omega} \rho(E) \rho(\hbar\omega - E'_g - E)$$
$$\times v^2(E) v^2(\hbar\omega - E'_g - E) dE, \qquad (3)$$

где $\hbar \omega$ – энергия кванта; E'_g – перенормированная ширина запрещённой зоны; I_0 – константа. Применимость этой формулы в нашем случае обусловлена следующим [12].

Как известно, фермиевские распределения в е-h-системе устанавливаются очень быстро, за времена, всего лишь в несколько раз превышающие время между соударениями электронов и дырок. В нашем случае – при очень большой плотности – характерное время между соударениями заведомо меньше 10 фс. А как показывают расчёты [10] и эксперименты [8, 9], характерные времена кооперативного излучения составляют сотни фемтосекунд, что гораздо больше времени установления фермиевских распределений. Кроме того, при коллективном распаде системы моменты рекомбинации отдельных e-h-пар коррелированны, и все частицы рекомбинируют практически одновременно. Это означает, что зависимость $I(\hbar\omega)$ будет определяться распределением электронов и дырок по энергии в соответствии с формулой (3) и не будет искажена перепоглощением и усилением в других областях структуры. И наконец, сверхкороткое время жизни кооперативного состояния подразумевает размытость энергетических уровней и соответственно интегрирование по энергии. Действительно, согласно принципу неопределенности, ширина энергетического уровня тем больше, чем меньшее время электрон или дырка находятся на нем. Поскольку кооперативное состояние существует всего лишь несколько сотен фемтосекунд, ширина отдельных уровней в зонах может быть весьма значительной (более 1 мэВ), что должно быть отражено при аппроксимации спектров формулой (3).

Плотность состояний квазичастиц $\rho(E)$ имеет особенность в точке $E = \Delta$ [22]:

$$\rho \propto \frac{E}{\left(E-\Delta\right)^{1/2}}.\tag{4}$$

Для устранения расходимости необходимо учитывать ширину энергетических уровней. Это можно сделать введением эффективной плотности состояний. Для простой лоренцевской формы линии эффективную плотность состояний можно записать [13] в следующем виде:

$$\rho_{\rm eff}(E) = \frac{1}{\pi} \int \frac{\rho(E) dE_1}{\pi (E - E_1)^2 + \Gamma^2},$$
(5)

где Γ – эффективная ширина уровней, которая в простейшем случае не зависит от энергии. Зависимость эффективной плотности состояний квазичастиц от их энергии иллюстрирует рис.10 [13].

Как и в случае куперовских пар, функция распределения квазичастиц $v^2(E)$ очень близка фермиевскому распределению с $kT = \Delta/1.76$ и может быть найдена числен-



Рис.10. Эффективная плотность состояний фермиевских квазичастиц как функция энергии. Стрелкой показано положение пика при $E = \Delta$.

ными методами [22–24]. Мы аппроксимировали её следующей функцией:

$$v^{2}(E) = \frac{1}{2} \left\{ 1 - \frac{E - \mu}{\left[(E - \mu)^{2} + \Delta^{2}(E) \right]^{1/2}} \right\},$$
(6)

где μ – энергия Ферми, а величина щели Δ , вообще говоря, зависит от квазиимпульса (энергии) и должна вычисляться самосогласованным образом [22–24].

Таким образом, аппроксимируя наблюдаемые спектры кооперативной рекомбинации по формулам (3)–(6), можно оценить параметры электронно-дырочного БКШсостояния. На рис.11 показан один из таких спектров; экспериментальные данные представлены звёздочками, аппроксимация – сплошной линией. Параметр порядка), энергия Ферми μ , перенормированная ширина запрещённой зоны E'_g и эффективная ширина уровней Γ . Видно, что расчётная кривая очень хорошо описывает экспериментальные данные. Хорошее совпадение было получено для всех без исключения спектров кооперативного излучения.

Зависимости параметра порядка Δ когерентного БКШ-состояния от запирающего напряжения (концентрации электронов и дырок) для четырёх образцов представлены на рис.12. Как показано в [14], концентрация носителей практически линейно растёт с величиной запирающего напряжения. В соответствии с теорией [22–24], энергетическая щель Δ уменьшается с ростом плотности e-h-пар (в нашем случае – с ростом запирающего напряжения), что отчётливо видно на рис.12 для всех образцов. Величина Δ более чем в 2 раза меньше энергии связи экситона. Следует отметить, что значения па-



Рис.11. Типичная аппроксимация спектра кооперативного излучения по формулам (3)–(6) при $E'_{\rm g}=1.4008$ эВ, $\mu=7.3$ мэВ, $\varDelta=2.53$ мэВ, $\Gamma=1.7$ мэВ.



Рис.12. Зависимость энергетической щели от запирающего напряжения (плотности e – h-пар) для четырёх образцов (помечены разными значками).

раметра ∆ с 10%-ной погрешностью совпадают для всех образцов. Зависимости энергии Ферми квазичастиц для тех же образцов показаны на рис.13. Следует обратить внимание на то, что энергия Ферми квазичастиц в когерентном БКШ-состоянии много меньше энергии Ферми для электронов (превышающей 100 мэВ) в GaAs при комнатной температуре и достигнутых концентрациях.

6. Отличие условий нашего эксперимента от условий бозе-конденсации экситонов

Продемонстрируем теперь качественное отличие наших экспериментальных условий от описанных другими авторами [4–7] условий наблюдения бозе-конденсации экситонов при низких температурах. Во-первых, как следует из формул (1) и (2), критическая температура конденсации растёт с увеличением концентрации бозонов. В наших экспериментах плотности электронов и дырок на много порядков превосходят соответствующие величины в указанных экспериментах. Это одно из условий возможности наблюдения конденсации при комнатной температуре.

Во-вторых, в отличие от бозе-конденсации экситонов, происходящей спонтанно, без участия какой-либо внешней силы, в нашем случае решающую роль в конденсации



Рис.13. Энергия Ферми квазичастиц как функция запирающего напряжения (концентрации е – h-пар) для четырёх образцов (см. рис.12).

e-h-пар и формировании БКШ-подобного состояния играет резонансное оптическое поле. Как хорошо известно, в двухкомпонентной среде (усилитель + поглотитель) можно легко управлять как усилением, так и поглощением, прикладывая прямое или обратное смещение к различным частям полупроводниковой структуры. При этом из-за эффекта Франца-Келдыша край поглощения обратносмещённой части сдвигается в длинноволновую область спектра. В результате, увеличивая обратное смещение на поглотителе, можно добиться гашения генерации во всем диапазоне частот и получить чисто спонтанное излучение в усилительных частях. Теперь с увеличением накачки в усилитель, можно достичь такой большой плотности носителей, что из-за смещения края зоны в область меньших энергий в самой длинноволновой части спектра усиление превысит поглощение. Рекомбинация e-h-пар, находящихся у самого дна зон, приводит к появлению фотонов, способных усиливаться. Эти фотоны при поглощении образуют связанные е-hпары (бозоны), которые когерентны и с полем и друг с другом в течение некоторого времени. Из-за очень быстрой внутризонной релаксации электроны и дырки с более высоких уровней заполняют освободившиеся места на самом дне практически мгновенно. Можно показать, что при очень больших плотностях (более (3-4) $\times 10^{18}$ см⁻³) все места в зоне проводимости в пределах 30-60 мэВ выше дна зоны будут заняты электронами. Это означает, что при разрушении бозона на дырку и электрон последнему просто некуда будет деться, кроме как занять свободный энергетический уровень, удаленный на 30-60 мэВ от дна зоны. Вероятность такого перехода очень мала, поэтому связанные пары, генерируемые оптическим полем и когерентные с ним, будут стабильны при комнатной температуре. Кинетическая энергия этих пар очень низка, чем и объясняется малая величина энергии Ферми электронов и дырок БКШсостояния, оцененная ранее. Подробнее механизм и условия конденсации e-h-пар при комнатной температуре будут рассмотрены в нашей следующей статье.

7. Заключение

Таким образом, совокупность экспериментальных данных позволяет сделать вывод о том, что при определённых условиях возможно существование нестационарного когерентного кооперативного состояния электронов и дырок в GaAs, излучательная рекомбинация которого наблюдается в виде мощных фемтосекундных импульсов. Это нестационарное когерентное состояние с временем жизни в несколько сотен фемтосекунд образуется при комнатной температуре и по некоторым своим свойствам похоже на ансамбль куперовских пар в сверхпроводнике. Показано, что, благодаря мощной накачке и специальной геометрии *p* - *i* - *n*-структур GaAs/AlGaAs, экспериментально достигнутые значения электронно-дырочной плотности превосходят критические концентрации, необходимые для конденсации е-hпар при комнатной температуре. Решающую роль в конденсации играет резонансное оптическое поле.

Экспериментально получены данные для оценки параметров когерентного электронно-дырочного БКШ-состояния. В частности получены зависимости параметра порядка Δ (щели в энергетическом спектре квазичастиц) и

энергии Ферми от плотности инжектированных е – h-пар. Стоит отметить, что БКШ-подобная щель в вырожденной электронно-дырочной системе, будучи меньше энергии связи экситона (в нашем случае 4 мэВ), ещё уменьшается с ростом концентрации. В свою очередь ширины наблюдаемых спектров кооперативной рекомбинации довольно велики (4–8 мэВ), что обусловлено фемтосекундным временем жизни коллективного состояния электронов и дырок. Это обстоятельство, когда энергетические уровни сильно размыты, делает, на наш взгляд, весьма проблематичным прямое наблюдение энергетической щели в спектре электронов и дырок.

Мы показали, что определяющими параметрами для конденсации e – h-пар и формирования когерентного БКШ-подобного состояния при комнатной температуре является масса и концентрация пар. Для наблюдения этих эффектов в других полупроводниковых системах необходимо отыскать полупроводник с минимальными массами тяжёлой и лёгкой дырок. Среди наиболее перспективных с этой точки зрения структур можно назвать напряжённые квантоворазмерные структуры, в которых за счёт перестройки зон с напряжением эффективная масса тяжёлой дырки может быть уменьшена в несколько раз.

В заключение отметим, что академик Николай Геннадиевич Басов был первым, кто обратил наше внимание на возможные изменения статистических свойств системы электронно-дырочных пар при кооперативном излучении. Во многом благодаря его интересу к нашей работе и были получены представленные результаты.

- 1. Келдыш Л.В., Копаев Ю.В. ФТТ, 6, 2791 (1964).
- Галицкий В.М., Гореславский С.П., Елесин В.Ф. ЖЭТФ, 57, 207 (1969).
- 3. Griffin A., Snoke D.W., Stringari S. (Eds) *Bose Einstein Condensation* (Cambridge: Cambridge University Press, 1995).
- Snoke D., Wolfe J.P., Mysyrowicz A. Phys. Rev. Lett., 64, 2643 (1990).
- Butov L.V., Zrenner A., Abstreiter G., Bohm G., Weimann G. *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 304 (1994).
- Butov L.V., Ivanov A.L., Imamoglu A., Littlewood P.B., Shashkin A.A., Dolgopolov V.T., Campman K.L., Gossard A.C. *Phys. Rev. Lett.*, 86, 5608 (2001).
- 7. Ларионов А.В., Тимофеев В.Б. Письма в ЖЭТФ, 73, 342 (2001).
- 8. Васильев П.П. Квантовая электроника, 21, 585 (1994).
- 9. Васильев П.П. Квантовая электроника, 24, 885 (1997).
- 10. Васильев П.П. Квантовая электроника, 29, 4 (1999).
- 11. Васильев П.П. УФН, 171, 679 (2001).
- 12. Васильев П.П., Кан Х., Ота Х., Хирума Т. ЖЭТФ, **120**, 1486 (2001).
- Vasil'ev P.P., Kan H., Ohta H., Hiruma T. *Phys. Rev. B*, 64, 195209 (2001).
- Васильев П.П., Кан Х., Ота Х., Хирума Т. Квантовая электроника, 31, 870 (2001).
- 15. Kim J.C., Wolfe J.P. Phys. Rev. B, 57, 9861 (1998).
- 16. Sackett C.A., Hulet R.G. J. Opt. B, 3, R1-28 (2001).
- Vasil'ev P. Ultrafast Diode Lasers: Fundamentals and Applications (Norwood: Artech House, 1995).
- 18. Littlewood P.B., Zhu X. Physica Scripta T, 68, 56 (1996).
- Schuurmans M.F.H., Vrehen Q.H.F., Polder D. Advances in Atomic and Molecular Physics, 17, 167 (1981).
- 20. Андреев А.В. УФН, 160, № 12, 1 (1990).
- 21. Тинкхам М. Введение в сверхпроводимость (М.: Атомиздат, 1980).
- 22. Chu H., Chang Y.C. Phys. Rev. B, 54, 5020 (1996).
- 23. Comte C., Mahler G. Phys. Rev. B, 34, 7164 (1986).
- Iida T., Hasegawa Y., Higashimura H., Aihara M. Phys. Rev. B, 47, 7164 (1993).