Экситонный оптический Штарк-эффект и квантовые биения на экситонных квазиэнергетических уровнях в квантовых ямах

© А.И. Бобрышева, М.И. Шмиглюк, В.Г. Павлов

Институт прикладной физики Академии наук Молдавии,
277028 Кишинев, Молдавия

(Поступила в Редакцию 15 апреля 1996 г.
В окончательной редакции 19 июня 1996 г.)

Теоретически изучен оптический Штарк-эффект и квантовые биения в GaAs/AlGaAs-квантовой яме в условиях, когда интенсивный импульс CO_2-лазера, поляризованный перпендикулярно плоскости квантовой ямы, динамически смешивает первые два уровня размерного квантования электрона. Получены спектр квазиэнергии *HH*-экситона, отношение вероятностей экситонного перехода в присутствии и в отсутствие сильного электромагнитного поля. Найдена зависящая от времени интенсивность поглощения пробного света. Она испытывает квантовые биения с удвоенной частотой Раби электрона.

В последние годы большое внимание уделяется изучению квантовых биений (КБ) на экситонах как в объемных полупроводниках, так и в квазидвумерных структурах. Спектроскопия КБ является эффективным методом для определения расстояния между близкими уровнями энергии и исследования когерентных состояний. При этом используются линейные и нелинейные оптические методы. В простейшем линейном методе близкорасположенные энергетические уровни возбуждаются лазерным импульсом, спектральная ширина которого больше расстояния между уровнями, а длительность короче времени когерентности состояний.

Линейная спектроскопия КБ была использована для изучения расщепленных магнитным полем экситонных состояний в объемном кристалле AgBr [1]. Аналогичным методом в присутствии магнитного поля обнаружены КБ в интенсивности люминесценции экситонного поляритона Γ_5^+ в Cu_2O [2,3] и связанных экситонов в CdS [4,5]. В результате были определены величины расщеплений экситонных уровней, времена квантовой когерентности состояний и g-факторы, четко разграничены вклады рамановского рассеяния и горячей люминесценции в излучение. Для описания динамического поведения и свойств когерентности экситонной системы, обнаруженных в этих опытах, использовался формализм матрицы плотности [1,4]. С помощью нелинейного метода четырехволнового смешивания в квантовых ямах (КЯ) обнаружены КБ между экситонными состояниями с тяжелой (*HH*) и легкой (*LH*) дырками [6–8], между свободным и связанным экситонами [7–9]. Этим же методом обнаружены биения между уровнями экситонов, расположенных на участках различной толщины (островках) КЯ [7,8,10].

Отметим, что методом КБ можно непосредственно исследовать близкие по энергии биэкситонные состояния, используя двухфотонную когерентную накачку в области биэкситонного резонанса. В КЯ биэкситоны могут образоваться двумя *HH*- или *LH*-экситонами, а также из одного *HH*- и одного *LH*-экситона [11,12]. Три близких биэкситонных состояния Γ_1, Γ_3 и Γ_5 имеются в CuBr [13].

В упомянутых выше работах [1–10] с помощью КБ исследовались либо уже существующие априори в полупровдниках близколежащие экситонные уровни, либо компоненты расщепленных внешним полем экситонных уровней. Очевидно, что методом КБ можно исследовать и квазиэнергетические спектры, образующиеся в поле сильной когерентной электромагнитной волны, частота которой близка к частоте перехода между двумя и более уровнями энергии электронов, дырок, экситонов и др.

В $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ КЯ толщиной 84.5 Å экспериментально обнаружен экситонный оптический Штарк-эффект [14], вызванный мощным излучением CO_2-лазера, поляризованным перпендикулярно слоям. Такой импульс накачки вызывает резонансные оптические переходы между уровнями размерного квантования электрона $\mu = 1$ и 2, динамически смешивает их, расщепляя каждый на два квазиэнергетических подуровня. Происходящие при этом изменения в спектре *HH*-ксситона были исследованы с помощью слабого пробного импульса.

В настоящей работе предлагается теория оптического Штарк-эффекта и КБ на экситонах в КЯ для экспериментальной ситуации, описанной в [14]. Краткое изложение теории Штарк-эффекта по эксперименту [14] дано ранее в [15].

1. Оптический Штарк-эффект

Ограничимся случаем прямоугольной КЯ (001) шириной d, в которой носители полностью локализованы. Полагается, что энергия размерного квантования носителей больше энергии связи экситона. Движение как электронов, так и дырок вдоль оси роста Z можно считать отделенным от движения в плоскости XY КЯ. Волновые функции (ВФ) носителей представляются в факторизованном виде. В точке $\mathbf{k} = 0$ зоны Бриллюэна ВФ электрона $\psi_{i\mu}$ и *HH* $\psi_{j\mu}$ преобразуются соответственно по неприводимым представлениям Γ_6 и Γ_6^* точечной группы D_{2d}; $i, j = 1, 2$ нумеруют строки представлений Γ_6 и Γ_6^*, а $\mu, \nu = 1, 2, 3, \ldots$ — уровни размерного квантования носителей.

Рассмотрим КЯ в поле интенсивного излучения CO_2-лазера с поляризацией $\mathbf{e}_L \parallel Z$, вызывающего дипольные переходы между уровнями размерного квантования $\mu = 1$ и 2 электронов. Периодическое возмущение представим в виде

$$V(t) = \hat{F}\exp(-i\omega_L t) + \text{H.c.}, \tag{1}$$

где $\hat{F}$ — оператор, не зависящий от времени. Расстройка резонанса $\varepsilon = \omega_2 - \omega_1 - \omega_L \ll \omega_L$, $\hbar\omega_1$, $\hbar\omega_2$ — энергии стационарных состояний с $\mu = 1$, 2. ВФ квазиэнергетических состояний электрона в лазерном поле (1) ищем в виде линейной комбинации

$$\Psi_{il} = \sum_{\mu} a_{\mu l}\,\psi_{i\mu}^{(0)}, \tag{2}$$

где коэффициенты $a_{\mu l}(t)$ явно зависят от времени, $\psi_{i\mu}^{(0)}$ — ВФ невозмущенной электронной системы, включающие множитель $\exp(-i\omega_\mu t)$. Индекс $l = 1$, 2 у функции (2) задается начальными условиями в предположении, что лазерное поле включается мгновенно в момент времени $t = 0$, когда система находилась в состоянии $\psi_{il}^{(0)}$.

Коэффициенты $a_{\mu l}(t)$ находим из временнóго уравнения Шредингера с гамильтонианом $H_0 + V(t)$ при условии, что $\psi_{i\mu}^{(0)}$ удовлетворяет этому уравнению с гамильтонианом H_0. Сохраняем только члены, временнáя зависимость которых определяется расстройкой резонанса ε. Начальные условия, необходимые для решения полученных дифференциальных уравнений, задаются пробным импульсом. В нашем случае частота зондирующего излучения резонансна частоте $HH1$-экситонного перехода. Это означает, что в начальный момент времени электронная система находилась в состоянии $\psi_{i1}^{(0)}$. Тогда в последующие моменты времени $t > 0$ нестационарное состояние электрона описывается ВФ

$$\Psi_{i1} = (2\Omega_R)^{-1}\Big[\alpha_1\exp(-i\alpha_2 t) + \alpha_2\exp(-i\alpha_1 t)\Big]\,\psi_{i1}^{(0)} + (2\hbar\Omega_R)^{-1}F_{21}\Big[\exp(-i\alpha_1 t) - \exp(-i\alpha_2 t)\Big]\,\psi_{i2}^{(0)},$$

$$\alpha_{12} = \mp\frac{\varepsilon}{2} + \Omega_R, \qquad \Omega_R = \left(\varepsilon^2/4 + |F_{12}|^2/\hbar^2\right)^{1/2},$$
$$F_{21} = 16eE_L d/9\pi^2. \tag{3}$$

Здесь E_L — напряженность электрического поля лазера, Ω_R — частота Раби, F_{21} — матричный элемент оператора $\hat{F}$ на ВФ $\psi_{i\mu}^{(0)}$. Спектр квазиэнергии состоит из четырех основных уровней

$$\tilde{\omega}_1 = \omega_1 - \alpha_1, \quad \tilde{\omega}_2 = \omega_1 + \alpha_2, \quad \tilde{\omega}_{3,4} = \tilde{\omega}_{1,2} + \omega_L. \tag{4}$$

Спектр (4) можно получить и другим способом. Запишем гамильтониан электронов с $\mu = 1$, 2, взаимодействующих с одной модой лазерного излучения, в следующем виде:

$$H(t) = \sum_{\mathbf{k}\mu}\hbar\omega_\mu a_{\mu\mathbf{k}}^{+}a_{\mu\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{k}}\Big[F_{12}\exp(-i\omega_L t)a_{2\mathbf{k}}^{+}a_{1\mathbf{k}} + \text{H.c.}\Big]. \tag{5}$$

С помощью унитарного преобразования переходим к представлению, в котором (5) не зависит от времени. Каноническим преобразовнием $\alpha_{m\mathbf{k}} = d_1 a_{1\mathbf{k}} + d_2 a_{2\mathbf{k}}$ полученный гамильтониан приводится к диагональному виду, если коэффициенты d_l удовлетворяют системе уравнений

$$\left(\tilde{\omega}_m - \omega_1 + b_1\omega_L\right)d_1 - fd_2 = 0,$$
$$\left(\tilde{\omega}_m - \omega_2 + b_2\omega_L\right)d_2 - f^*d_1 = 0, \tag{6}$$

где $f = F_{12}/\hbar$, $b_2 - b_1 = 1$.

Из условия нетривиальной разрешимости (6) относительно d_l получаем уравнение для определения спектра $\tilde{\omega}_m$. Придавая конкретные значения целочисленным параметрам b_1 и b_2, можно выбрать определенную пару квазиэнергетичеких уровней. В случае $b_2 = 1$, $b_1 = 0$ из детерминантного уравнения находим первую пару частот (4), а для $b_2 = 0$, $b_1 = -1$ — вторую пару. При этом каждый уровень остается двухкратно вырожденным.

Построим теперь ВФ дипольно-активного экситона, состоящего из HH в состоянии $\nu = 1$ и электрона в состоянии (3). Они имеют вид

$$\Psi_{ex}(\mathbf{K},\eta) = (2\Omega_R)^{-1}\Big[\alpha_2\exp(-i\Omega_1 t) + \alpha_1\exp(-i\Omega_2 t)\Big]\psi_{11}^{(0)}(\mathbf{K},\eta) - (2\hbar\Omega_R)^{-1}F_{21} \times \Big[\exp(-i\Omega_3 t) - \exp(-i\Omega_4 t)\Big]\psi_{21}^{(0)}(\mathbf{K},\eta), \tag{7}$$

где $\eta = X, Y$, $\psi_{11}^{(0)}$ и $\psi_{21}^{(0)}$ — ВФ экситона в отсутствие накачки для $\mu = \nu = 1$ и $\mu = 2$, $\nu = 1$ в момент времени $t = 0$. Для произвольных μ, ν и t они имеют вид

$$\psi_{\mu\nu}^{(0)}(\mathbf{K},X) = \frac{1}{\sqrt{2}}\sum_{\mathbf{k},\mathbf{p}}\Psi(\mathbf{K},\mathbf{k},\mathbf{p})\exp\Big[-i\omega_{\mu\nu}(\mathbf{K})\,t\Big] \times \left(a_{2\mu\mathbf{k}}^{+}\,b_{2\nu\mathbf{p}}^{+} - a_{1\mu\mathbf{k}}^{+}\,b_{1\nu\mathbf{p}}^{+}\right)|0\rangle,$$

$$\psi_{\mu\nu}^{(0)}(\mathbf{K},Y) = \frac{i}{\sqrt{2}}\sum_{\mathbf{k},\mathbf{p}}\Psi(\mathbf{K},\mathbf{k},\mathbf{p})\exp\Big[-i\omega_{\mu\nu}(\mathbf{K})\,t\Big] \times \left(a_{1\mu\mathbf{k}}^{+}\,b_{1\nu\mathbf{p}}^{+} + a_{2\mu\mathbf{k}}^{+}\,b_{2\nu\mathbf{p}}^{+}\right)|0\rangle, \tag{8}$$

где $\Psi(\mathbf{K},\mathbf{k},\mathbf{p})$ — Фурье-образ функции относительного движения, $\hbar\omega_{\mu\nu}(\mathbf{K})$ — энергия образования двумерного HH-экситона, $\mathbf{K},\mathbf{k},\mathbf{p}$ — двумерные волновые векторы экситона, электрона и дырки, $a_{i\mu\mathbf{k}}^{+}(b_{j\nu\mathbf{p}}^{+})$ — оператор рождения электрона (дырки). ВФ (8) преобразуются по неприводимому представлению E группы D_{2d} как координаты X и Y. ВФ (7) описывает нестационарное состояние экситона для $t > 0$. Квазиэнергетический спектр состоит из четырех двухкратно вырожденных уровней

$$\Omega_1 = \omega_{11} - \alpha_1, \qquad \Omega_2 = \omega_{11} + \alpha_2,$$
$$\Omega_3 = \omega_{21} - \alpha_2 = \Omega_1 + \omega_L, \ \Omega_4 = \omega_{21} + \alpha_1 = \Omega_2 + \omega_L. \tag{9}$$

Рассмотрим далее дипольный переход из основного состояния КЯ в экситонные (7) и (8) под действием пробного импульса. Рождение электронно-дырочной пары при поглощении света, поляризованного в плоскости КЯ, описывается оператором

$$\hat{H}(\eta) = -\frac{ie}{m_0}\left(\frac{2\pi\hbar^3}{sd\varepsilon_\infty}\right)^{1/2} \sum_{\mathbf{qkp}ij\mu\nu} \omega_{\mathbf{q}}^{-1/2} \times \langle\psi_{i\mu}|\exp(-i\omega_{\mathbf{q}}t)(\mathbf{e}_\eta\boldsymbol{\nabla})|\psi_{j\nu}\rangle c_{\mathbf{q}}\, a^+_{i\mu\mathbf{k}}\, b^+_{j\nu\mathbf{p}}. \quad (10)$$

$c_{\mathbf{q}}$ — оператор уничтожения фотона с энергией $\hbar\omega_{\mathbf{q}}$, волновым вектором $\mathbf{q} \parallel Z$ и вектором поляризации $\mathbf{e}_\eta$, S — площадь поверхности КЯ. Используя оператор (10), находим, что отношение вероятности W перехода в экситонное состояние (7) к вероятности W_{11} перехода в состояние (8) для $\mu = \nu = 1$ после замены δ-функций на лоренцианы дается выражением

$$W/W_{11} = (4\Omega_R^2)^{-1}\Big[(\hbar\omega_{11} - \hbar\omega_{\mathbf{q}})^2 + \Gamma^2\Big] \times \left\{\alpha_2^2\Big[(\hbar\Omega_1 - \hbar\omega_{\mathbf{q}})^2 + \Gamma^2\Big]^{-1} + \alpha_1^2\Big[(\hbar\Omega_2 - \hbar\omega_{\mathbf{q}})^2 + \Gamma^2\Big]^{-1}\right\}, \quad (11)$$

где Γ — полуширина экситонного уровня, введенная феноменологически.

Для оценки (11) воспользуемся значениями параметров, приведенными в [14]: $\Gamma = 1.75$ meV, $\hbar\varepsilon = 6.6$ meV, $E_L = 10^4$ V/cm, $F_{12} = 6$ meV, $\hbar\omega_L = 110.3$ meV, $\hbar\omega_{\mathbf{q}} = 1.565$ eV.

При условии $\hbar\omega_{\mathbf{q}} = \hbar\omega_{11}$ получим, что контрастность $W_{11}/W \approx 9$.

2. Квантовые биения

В результате динамического смешивания первых двух уровней размерного квантования электрона интенсивным резонансным лазерным излучением $HH1$-экситон при $t > 0$ оказался в смешанном когерентном состоянии, описываемом ВФ (7). Такое состояние обычно называется "чистым". Спектр (9) экситонного чистого состояния (7) состоит из двух пар близкорасположенных уровней. Расстояние между парами составляет ω_L, а между уровнями внутри пары — $2\Omega_R \ll \omega_L$. При этом оптические дипольные переходы из основного состояния КЯ разрешены только на нижнюю пару уровней. Поэтому ВФ этих двух уровней квазиэнергии могут быть записаны в виде

$$\varphi = \exp(-i\Omega_{1,2}t)\,\psi_{11}^{(0)}(\mathbf{K},\eta). \quad (12)$$

Рассмотрим разрешенную во времени интенсивность $I_\eta(t)$ поглощения пробного испульса с поляризацией η, спектральной шириной больше чем $2\Omega_R$ и длительностью меньше времени когерентности T_2 состояния (7). В любой момент времени $t < T_2$ величина $I_\eta(t)$ пропорциональна квадрату модуля матричного элемента $\langle 0|\hat{H}(\eta)|\psi_{ex}(\mathbf{K}.\eta)\rangle$, т. е.

$$I_\eta(t) \sim |M_\eta|^2 = |M^0_{11\eta}|^2\Big(\beta_1^2 + \beta_2^2 + 2\beta_1\beta_2\cos(2\Omega_R t)\Big), \quad (13)$$

где $\beta_{1,2} = \alpha_{1,2}/2\Omega_R$. Из (13) следует, что квантовые биения в интенсивности поглощения происходят с частотой $\Omega = 2\Omega_R$.

Для феноменологического учета в $I_\eta(t)$ кинетики распада когерентного суперпозиционного состояния (7) воспользуемся определением матрицы плотности чистых состояний[16]. В качестве базисных используем ВФ (12). Тогда элементы матрицы плотности имеют вид

$$\rho = \beta_i\beta_j, \qquad i, j = 1,\ 2. \quad (14)$$

Поэтому подставим в (13) вместо $\beta_i\beta_j$ элементы матрицы плотности (14). Поскольку заселенности уровней релаксируют со скоростью $\gamma = 1/T_1$, а высокочастотный дипольный момент $\rho_{ij}(i \neq j)$ — со скоростью $\Gamma = 1/T_2$, для $I_\eta(t)$ окончательно имеем

$$I_\eta(t) \sim |M^0_{11\eta}|^2\Big[(\beta_1^2 + \beta_2^2)\exp(-\gamma t) + 2\beta_1\beta_2\exp(-\Gamma t)\cos(2\Omega_R t)\Big], \quad (15)$$

где T_1 и T_2 — соответственно время продольной и поперечной релаксаций.

Для оценки использованы следующие значения параметров: $d \approx 80$ Å, $E_L = 10^4$ V/cm. В этом случае $\varepsilon \approx 0$, а $2\hbar\Omega_R = 2F_{12} \approx 2.8$ meV, $T = 2\pi/\Omega = 1$ ps. Для $E_L = 10^3$ V/cm получаем $T = 10$ ps.

Работа выполнена в рамках гранта INTAS (94-0324).

Список литературы

[1] V. Langer, H. Stolz, W. von der Osten. Phys. Rev. Lett. **64**, *8*, 854 (1990).

[2] V. Langer, H. Stolz, W. von der Osten, D. Fröhlich, A. Kulik, B. Uebbing. Europhys. Lett. **18**, *8*, 723 (1992).

[3] V. Langer, H. Stolz, W. von der Osten. Phys. Rev. **B51**, *4*, 2103 (1995).

[4] H. Stolz, Phys. Stat. Sol. (b) **173**, *1*, 99 (1992).

[5] H. Stolz, V. Langer, E. Schreiber, S. Permogorov, W. von der Osten. Phys. Rev. Lett. **67**, *6*, 679 (1991).

[6] B.F. Feurbacher, J. Kuhl, R. Eccleston, K. Ploog. Solid State Commun. **74**, **12**, 1279 (1990).

[7] K. Leo, E.O.Göbel, T.C. Damen, J. Shah, S. Schmitt-Rink, W. Schäfer, J.F. Müller, K. Köhler, P. Ganser. Phys. Rev. **B44**, *11*, 5726 (1991).

[8] K. Leo, J. Shah, E.O. Göbel, T.C. Damen, S. Schmitt-Rink, W. Schäfer, J.F. Müller, K. Köhler. Mod. Phys. Lett. **B5**, *2*, 87 (1991).

[9] K. Leo, T.C. Damen, K. Köhler. Phys. Rev. **B42**, *17*, 11 359 (1990).

[10] E.O. Göbel, K. Leo, T.C. Damen, J. Shah, S. Schmitt-Rink, W. Schäfer, J.F. Müller, K. Köhler. Phys. Rev. Lett. **B64**, *15*, 1801 (1990).

[11] A.I. Bobrysheva, S.S. Russu, V.A. Zaloj. Phys. Stat. Sol. (b) **146**, *1*, 329 (1988).
[12] A.I. Bobrysheva, S.S. Russu. Phys. Stat. Sol. (b) **159**, *1*, 155 (1990).
[13] A.I. Bobrysheva, V.V. Baltaga, M.V. Grodetskii. Phys. Stat. Sol. (b) **123**, *1*, 169 (1984).
[14] D. Fröhlich, R. Wille, W. Schlapp, G. Weimann. Phys. Rev. Lett. **59**, *15*, 1748 (1987).
[15] A.I. Bobrysheva, M.I. Shmiglyuk, P.I. Bardetskii. S.S. Russu. Proc. of the 8th Int. Conf. on Ternary and Multinary Compounds (Kishinev, USSR, September 11–14, 1990). Shtiintsa, Kishinev (1990). V. 2. P. 500–503.
[16] К. Блум. Теория матрицы плотности и ее приложения. Мир, М. (1983). 247 с.