

Оптические свойства полупроводника в экситонной области спектра в условиях действия мощного импульса накачки в области M -полосы

© П.И. Хаджи, Л.Ю. Надькин

Приднестровский государственный университет им. Т.Г. Шевченко,
МД 3300 Тирасполь, Молдавия
E-mail: tdsu4@idknet.com

Институт прикладной физики Академии наук Молдавии,
МД 2800 Кишинев, Молдавия

(Поступила в Редакцию 9 февраля 2005 г.)

Исследовано поведение диэлектрической восприимчивости полупроводника при зондировании экситонного состояния фононами слабого импульса в присутствии мощного лазерного импульса в области M -полосы люминесценции CuCl. Показано, что имеет место ярко выраженный эффект Аутлера–Таунса на экситонном переходе. Положение пиков поглощения существенно определяется амплитудой и частотой поля накачки.

1. Введение

В экспериментальных исследованиях оптических свойств полупроводников в экситонной области спектра при больших уровнях возбуждения особую значимость приобрел метод *pump-probe*. Он основан на использовании двух пучков лазерного излучения: мощного пучка накачки и слабого, зондирующего пучка. Слабый пучок зондирует изменения оптических свойств кристалла, обусловленных действием мощного пучка накачки.

Методом *pump-probe* изучалась кинетика излучательной рекомбинации биэкситонов, нелинейный отклик системы экситонов и биэкситонов большой плотности [1–3], красный и голубой сдвиги экситонной полосы в условиях пикосекундной накачки [4–6]. Экспериментально и теоретически [7–9] изучен эффект Аутлера–Таунса на биэкситонах в CuCl. В эксперименте [7] наблюдалось расщепление биэкситонной полосы поглощения в CuCl на две линии при больших уровнях возбуждения. При этом зондирование биэкситонного состояния проводилось посредством двухфотонного поглощения, приводящего к возбуждению биэкситонов из основного состояния кристалла в присутствии мощного пучка накачки в области M -полосы поглощения. Из величины расщепления авторы [7] определили соответствующий дипольный момент перехода в области M -полосы. Идея этого эксперимента впервые была предложена в [10].

В теоретических работах [8–14] рассматривались различные аспекты метода *pump-probe* для системы экситонов и биэкситонов большой плотности. В [14] показано, что восприимчивости полупроводника в экситонной области спектра при учете упругого экситон-экситонного взаимодействия испытывают бистабильное поведение в зависимости от частоты и интенсивности импульса накачки и свидетельствуют о возможности усиления слабого сигнала. В [8,9] были изучены диэлектрические восприимчивости кристалла типа CuCl для случая, когда мощный импульс накачки действует в области M -полосы, а зондирование проводится путем двухфотонного поглощения света с образованием биэкситонов. В связи с этим возникает вопрос о возмож-

ности зондирования кристалла типа CuCl в экситонной области спектра при использовании механизма однофотонного возбуждения экситонов из основного состояния кристалла с сохранением при этом накачки в области M -полосы. В этом случае модель энергетического спектра полупроводника с уровнями энергии экситона и биэкситона является существенно неэквидистантной (рис. 1). Фотоны импульса накачки могут осуществлять только оптическую экситон-биэкситонную конверсию, но не могут участвовать в зондировании в силу большой расстройки резонанса по отношению к частоте экситонного перехода.

2. Постановка задачи и основные уравнения

Пусть на полупроводник типа CuCl падает интенсивная монохроматическая волна (накачка) когерентного лазерного излучения с амплитудой поля E_0 и частотой $\omega_1 \approx \Omega_0 - \omega_0$, где Ω_0 и ω_0 — собственные частоты биэкситонного и экситонного состояний соответственно, а также слабая волна (пробный импульс) с амплитудой E и частотой $\omega \approx \omega_0$ (рис. 1). Фотоны первого импульса смешивают экситонное и биэкситонное состояния, су-

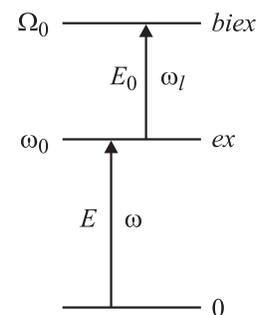


Рис. 1. Схема энергетических уровней экситона и биэкситона в кристалле типа CuCl и квантовых переходов под действием полей E_0 и E накачки и зондирующего импульсов соответственно.

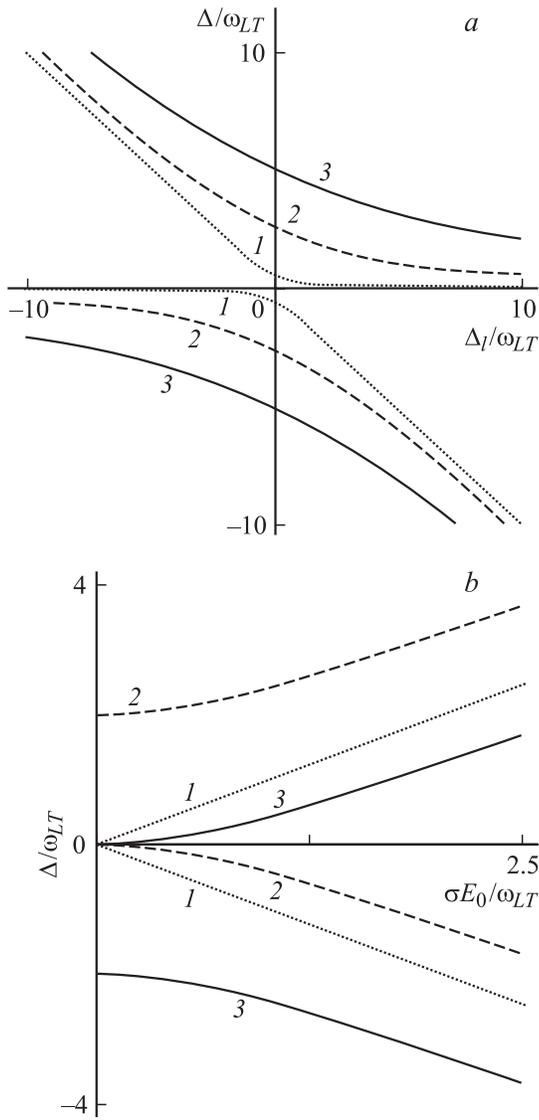


Рис. 2. Зависимость перенормированных частот $\omega_{\pm} - \omega_0 = \Delta_{\pm}$ экситонных состояний (квазиуровней экситона): *a* — от расстройек резонанса Δ_l поля накачки при фиксированных значениях поля накачки $\sigma E_0/\omega_{LT}$, равных 0.5 (1), 2.5 (2), 5 (3), и *b* — от амплитуды поля E_0 при различных значениях расстройки резонанса Δ_l/ω_{LT} импульса накачки, равных 0 (1), -2 (2), 2 (3).

щественно изменяя энергетический спектр полупроводника, а фотоны второго импульса зондируют эти изменения в области экситонного перехода. Гамильтониан взаимодействия экситонов и биэкситонов со светом в резонансном приближении можно записать в виде

$$H = -\hbar g [E^+ a^+ \exp(-i\omega t) + E^- a \exp(i\omega t)] - \hbar \sigma [E_0^- a^+ b \exp(i\omega t) + E_0^+ a b^+ \exp(-i\omega t)], \quad (1)$$

где a, b — амплитуды экситонной и биэкситонной волн поляризации среды соответственно, g — константа экситон-фотонного взаимодействия, σ — константа оптической экситон-биэкситонной конверсии [15], $E_0^+ (E^+)$

и $E_0^- (E^-)$ — положительно- и отрицательно-частотные компоненты полей. Из (1) легко получить гайзенберговские (материальные) уравнения для амплитуд a и b

$$i\dot{a} = (\omega_0 - i\gamma_1)a - gE^+ \exp(i\omega t) - \sigma E_0^- b \exp(i\omega t), \quad (2)$$

$$i\dot{b} = (\Omega_0 - i\gamma_2)b - \sigma E_0^+ a \exp(-i\omega t), \quad (3)$$

где γ_1 и γ_2 — феноменологические константы, учитывающие затухание экситонных и биэкситонных уровней из-за процессов рассеяния, обусловленных уходом экситонов и биэкситонов из когерентных мод в некогерентные.

Изучим отклик системы во всех порядках теории возмущений по амплитуде E_0 импульса накачки и в первом порядке теории возмущений по амплитуде поля E зондирующего импульса в стационарном режиме. Из (2) и (3) легко получить стационарные амплитуды a и b , выражение для поляризации P и найти восприимчивость среды χ

$$\chi = -\frac{\hbar g^2}{\Delta + i\gamma_1 - \frac{\sigma^2 E_0^2}{\Delta + \Delta_l + i\gamma_2}}, \quad (4)$$

где $\Delta = \omega - \omega_0$, $\Delta_l = \omega_l - \Omega_0 + \omega_0$ — расстройки резонанса.

В пределе исчезающе малых констант затухания восприимчивость среды χ является действительной функцией вида

$$\chi = -\frac{\hbar g^2 (\Delta + \Delta_l)}{\Delta (\Delta + \Delta_l) - \sigma^2 E_0^2}. \quad (5)$$

Она расходится при двух значениях расстройек резонанса Δ для поля слабого импульса, которые определяются выражениями

$$\Delta_{\pm} = \left(-\Delta_l \pm \sqrt{\Delta_l^2 + 4\sigma^2 E_0^2} \right) / 2. \quad (6)$$

Расстройки Δ_{\pm} определяют новые, перенормированные собственные частоты $\omega_{\pm} = \omega_0 + \Delta_{\pm}$ экситонных состояний (квазиуровни), возникающих под действием поля накачки. Разность собственных частот (расщепление Аутлера-Таунса) квазиуровней $\Omega = \omega_+ - \omega_- = \sqrt{\Delta_l^2 + 4\sigma^2 E_0^2}$ определяет частоту оптических нутаций в системе экситонов и биэкситонов в области M -полосы [15]. Из (6) и рис. 2 видно, что чем больше амплитуда поля накачки E_0 и чем больше абсолютное значение расстройки Δ_l , тем больше расщепление Аутлера-Таунса. В пределе, когда частота Раби σE_0 намного превосходит расстройку резонанса $|\Delta_l|$, расщепление растет линейно с ростом E_0 . В обратном пределе, когда $|\Delta_l| \gg \sigma E_0$, получаем $\Delta_+ \rightarrow \sigma^2 E_0^2 / \Delta_l$, $\Delta_- \rightarrow -\Delta_l$ при $\Delta_l > 0$ и $\Delta_+ \rightarrow -\Delta_l$, $\Delta_- \rightarrow \sigma^2 E_0^2 / \Delta_l$ при $\Delta_l < 0$.

Отметим, что полоса поглощения слабого импульса при $\gamma_1, \gamma_2 \rightarrow 0$ состоит из двух δ -образных пиков на частотах $\omega = \omega_+$ и $\omega = \omega_-$. Поэтому кривые на рис. 2 можно интерпретировать как графики спектрального положения пиков полос поглощения слабого света в зависимости от расстройки резонанса Δ_l и амплитуды поля E_0 импульса накачки.

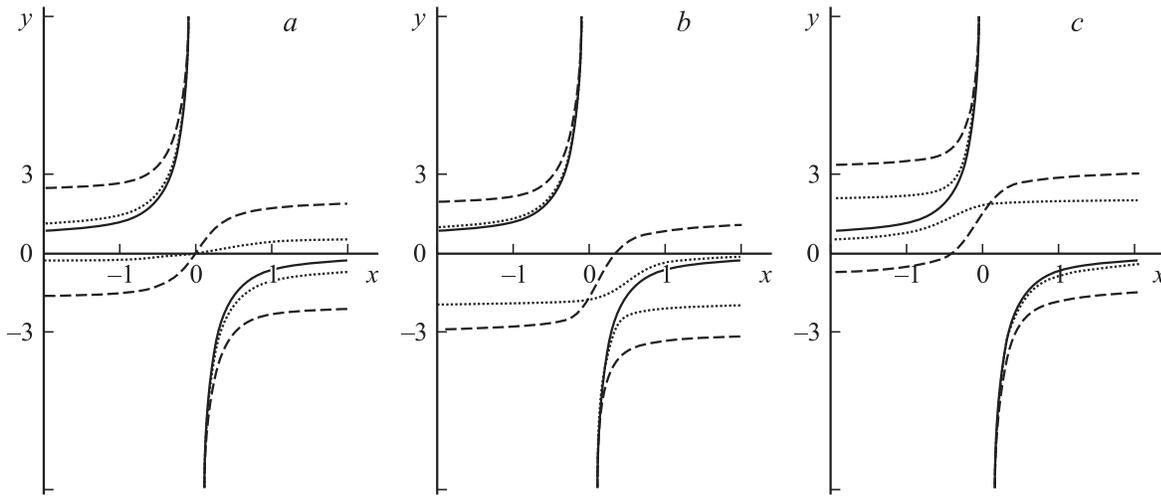


Рис. 3. Поляритоноподобные законы дисперсии для фотонов слабого импульса в окрестности экситонного состояния при значениях расстройки резонанса Δ_l/ω_{LT} поля накачки, равных $a - 0$, $b - 2$ и $c - 2$, и различных значениях поля накачки $\sigma E_0/\omega_{LT}$, равных 0.5 (пунктирные кривые) и 5 (штриховые кривые). Линейные экситон-поляритоны в отсутствие поля накачки показаны сплошными кривыми. Здесь $x = ck/\sqrt{\varepsilon_\infty}\omega_{LT}$, $y = \sigma E_0/\omega_{LT}$.

Используя (5), закон дисперсии $\omega(k)$ для фотонов пробного импульса в присутствии поля накачки можно записать в виде

$$\frac{c^2 k^2}{\omega^2} = \varepsilon_\infty \left(1 - \omega_{LT} \left(\Delta - \frac{\sigma^2 E_0^2}{\Delta + \Delta_l} \right)^{-1} \right), \quad (7)$$

где ε_∞ — фоновая диэлектрическая постоянная, ω_{LT} — продольно-поперечное расщепление в экситонной области спектра. Все существенные особенности закона дисперсии при изменении амплитуды поля накачки имеют место в окрестности частоты экситонного перехода (рис. 3). В дисперсионной зависимости фотонов имеется три ветви. Спектральная область существования средней ветви ограничена частотами ω_+ и ω_- и расширяется с ростом E_0 . Нижняя и верхняя дисперсионные ветви при больших значениях волнового вектора k стремятся к значениям расстройек резонанса $\Delta_\pm = \omega_+ - \omega_-$. С ростом $|\Delta_l|$ дисперсионные ветви смещаются в длинноволновую (коротковолновую) сторону при $\Delta_l > 0$ ($\Delta_l < 0$) (рис. 3).

Вводя нормированные величины $\delta = \Delta/\gamma_1$, $\delta_l = \Delta_l/\gamma_1$, $s = \gamma_2/\gamma_1$, $f_0 = \sigma E_0/\gamma_1$, $\chi_0 = \hbar g^2/\gamma_1$, из (4) для дисперсионной (действительной) χ' и абсорбционной (мнимой) χ'' компонент восприимчивости получаем выражения

$$\frac{\chi'}{\chi_0} = - \frac{(\delta - (\delta + \delta_l) \frac{f_0^2}{(\delta + \delta_l)^2 + s^2})}{(\delta - (\delta + \delta_l) \frac{f_0^2}{(\delta + \delta_l)^2 + s^2})^2 + (1 + s \frac{f_0^2}{(\delta + \delta_l)^2 + s^2})^2}, \quad (8)$$

$$\frac{\chi''}{\chi_0} = - \frac{(1 + s \frac{f_0^2}{(\delta + \delta_l)^2 + s^2})}{(\delta - (\delta + \delta_l) \frac{f_0^2}{(\delta + \delta_l)^2 + s^2})^2 + (1 + s \frac{f_0^2}{(\delta + \delta_l)^2 + s^2})^2}. \quad (9)$$

3. Обсуждение результатов

Из (9) видно, что абсорбционная компонента χ'' является положительно определенной величиной при любых значениях f_0 , δ и δ_l . Это означает, что возможно только поглощение слабого сигнала. Эффект усиления невозможен.

Из (8) и (9) следует, что восприимчивости χ' и χ'' являются нелинейными функциями амплитуды f_0 поля мощного импульса накачки и зависят от частот ω и ω_l обоих импульсов. В условиях точного резонанса между частотами каждого из импульсов и частотами соответствующих переходов ($\omega = \omega_0$, $\omega_l = \Omega_0 - \omega_0$) получаем $\chi' = 0$ и

$$\chi''/\chi_0 = (1 + f_0^2/s)^{-1}. \quad (10)$$

Отсюда видно, что абсорбционная компонента восприимчивости χ'' в условиях точного резонанса быстро насыщается с ростом интенсивности накачки, т.е. поглощение слабого импульса на частоте экситонного перехода подавляется при больших уровнях возбуждения импульсом накачки в области M -полосы.

Обсудим поведение абсорбционной компоненты восприимчивости χ'' (полосы поглощения слабого импульса в экситонной области спектра) в зависимости от расстройки резонанса δ в условиях, когда фотоны импульса накачки находятся в точном резонансе с частотой перехода в области M -полосы ($\delta_l = 0$, $\omega_l = \Omega_0 - \omega_0$). При низких уровнях возбуждения полоса поглощения имеет лоренцевскую форму $\chi''/\chi_0 = (1 + \delta^2)^{-1}$ с максимумом при $\delta = 0$ (рис. 4, а). С ростом уровня возбуждения f_0 амплитуда пика поглощения в соответствии с (10) быстро убывает, а его полуширина постепенно растет. Когда интенсивность поля накачки достигает величины $f_0^2 = s^3/(1 + 2s)$ происходит радикальная перестройка

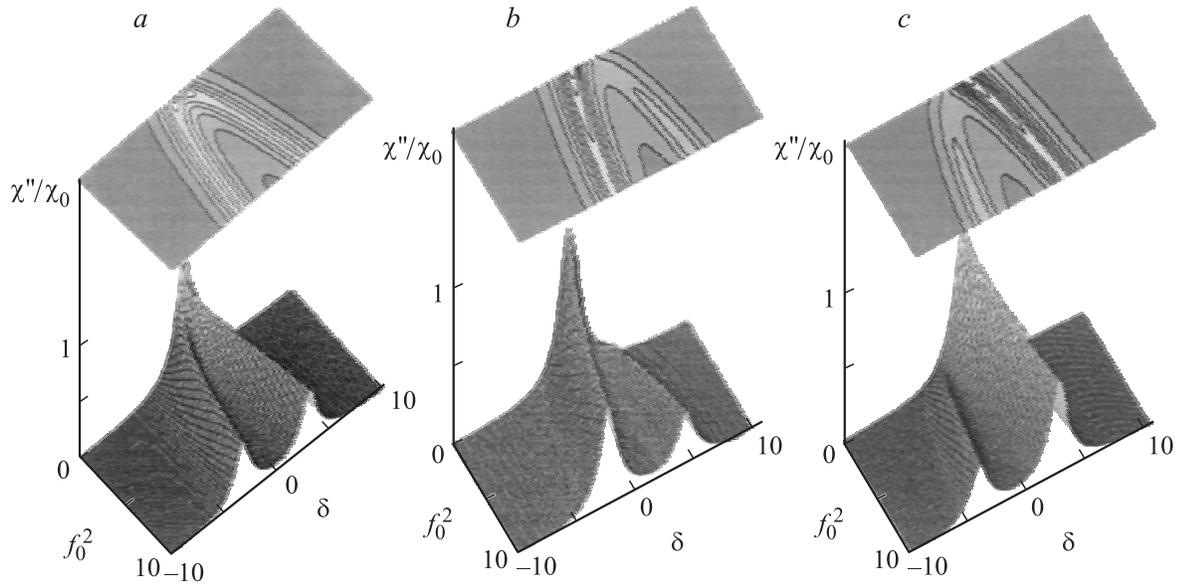


Рис. 4. Абсорбционная компонента восприимчивости χ'' в зависимости от расстройки резонанса δ и интенсивности поля накачки f_0^2 при различных фиксированных расстройках резонанса фотонов импульса накачки δ_l , равных *a* — 0, *b* — 2, *c* — 2.

спектральной формы полосы поглощения (рис. 4, *a*): центральный пик при $\delta = 0$ превращается в минимум и возникает два симметричных относительно $\delta = 0$ максимума полосы поглощения при расстройках резонанса

$$\delta_{\pm} = \pm \left[(1 + s) f_0 \sqrt{f_0^2 + s} - s(f_0^2 + s) \right]^{1/2}. \quad (11)$$

Новые пики поглощения все дальше расходятся с ростом поля накачки f_0 , причем их амплитуды монотонно убывают (рис. 4, *a*). Возникновение симметричных максимумов и минимума обусловлено перенормировкой энергетического спектра полупроводника под действием мощного импульса накачки. Экситонный уровень расщепляется на два квазиуровня, которые все больше отходят от положения экситонного уровня с ростом f_0 . При $f_0^2 \gg s$ из (11) получаем $\delta_{\pm} = \pm f_0$, что совпадает с (6) при $\Delta_l = 0$. Из рис. 3 видно, что при $\delta_l = 0$ верхняя и нижняя поляритонная ветви закона дисперсии симметрично смещаются относительно частоты ω_0 экситонного перехода с ростом амплитуды f_0 поля накачки.

Если фотоны импульса накачки обладают отличной от нуля расстройкой резонанса ($\delta_l \neq 0$), имеет место заметная несимметричная (относительно $\delta = 0$) перестройка абсорбционной компоненты восприимчивости χ'' (рис. 4, *b, c*), обусловленная особенностями перестройки закона дисперсии. В отсутствие поля накачки ($f_0 = 0$) полоса поглощения по-прежнему имеет симметричную лоренцевскую форму. С ростом амплитуды f_0 поля накачки при $\delta_l = 0$ спектральная форма полосы поглощения деформируется: ее максимум быстро убывает и смещается в длинноволновую сторону, одновременно увеличивается полуширина кривой $\chi''(\delta)$ (рис. 4, *b*). При некотором значении амплитуды поля накачки от коротковолнового хвоста интенсивной полосы поглощения

отщепляется слабый коротковолновый пик, амплитуда которого медленно растет с ростом уровня возбуждения, а сам пик монотонно смещается в коротковолновую сторону. При дальнейшем увеличении уровня возбуждения f_0 длинноволновый пик полосы поглощения продолжает смещаться в длинноволновую область, его амплитуда монотонно убывает, тогда как амплитуда слабого коротковолнового пика медленно растет, смещаясь в коротковолновую сторону. При больших уровнях возбуждения абсорбционная восприимчивость состоит из ярко выраженного длинноволнового и слабого коротковолнового пиков, каждый из которых имеет практически лоренцевскую форму (рис. 4, *b*). Аналогичные явления имеют место в случае $\delta_l > 0$ (рис. 4, *c*).

Интерес представляет также зависимость абсорбционной компоненты восприимчивости χ'' от амплитуды поля накачки f_0 при фиксированных значениях расстроек резонанса δ и δ_l . Из (9) следует, что при $\delta_- < \delta < \delta_+$ функция $\chi''(f_0)$ монотонно убывает с ростом f_0 , тогда как при $\delta \geq \delta_+$ и $\delta \leq \delta_-$ функция $\chi''(f_0)$ сначала растет с ростом f_0 , достигая своего максимума при

$$f_0^2 = \sqrt{s^2 + (\delta + \delta_l)^2} \left[|(s + 1)\delta + \delta_l| - \sqrt{s^2 + (\delta + \delta_l)^2} \right] / s,$$

после чего монотонно убывает (рис. 4). Здесь

$$\delta_+ = \left(\sqrt{\delta_l^2 + s(2 + s)} - \delta_l \right) / (2 + s),$$

$$\delta_- = - \left(\sqrt{\delta_l^2 + s(2 + s)} + \delta_l \right) / (2 + s).$$

Это обусловлено тем, что функция χ'' имеет резонансный характер не только по расстройке резонанса δ слабого импульса, но также и по амплитуде поля накачки f_0 при заданном δ . Следовательно, по-прежнему имеет

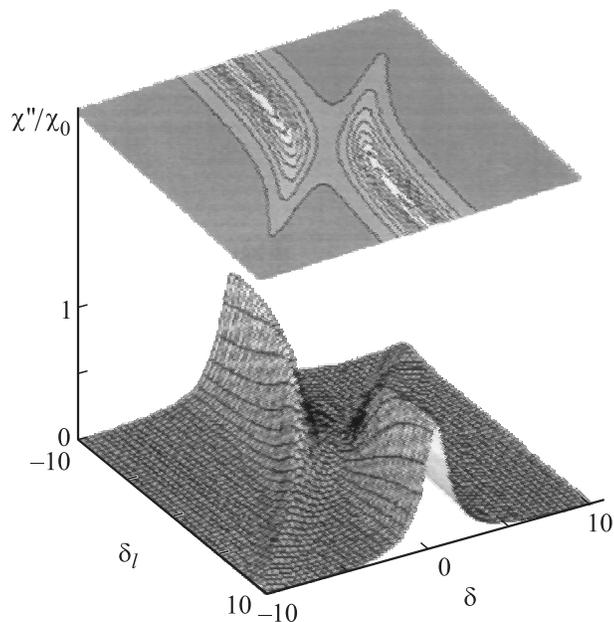


Рис. 5. Абсорбционная компонента восприимчивости χ'' в зависимости от расстроек резонанса δ и δ_l зондирующего импульса и импульса накачки при фиксированном значении интенсивности поля накачки f_0^2 , равном 5.

место эффект насыщения поглощения слабого сигнала, однако при малых амплитудах накачки возможно увеличение поглощения с ростом уровня возбуждения (рис. 4).

На рис. 5 представлена эволюция поглощения в плоскости переменных (δ, δ_l) при фиксированном уровне возбуждения f_0 . Видно, что пик длинноволновой (коротковолновой) полосы поглощения с ростом расстройки резонанса δ_l импульса накачки постепенно смещается в длинноволновую сторону и уменьшается (увеличивается) по амплитуде. При большой отрицательной (положительной) расстройке δ_l существует практически только длинноволновой (коротковолновой) пик полосы поглощения.

4. Заключение

Отметим существование качественного сходства выражений для восприимчивостей, полученных в настоящей работе и в [8,9] в рамках одной и той же модели энергетического спектра полупроводника, одной и той же накачки, но с использованием двух различных способов наблюдения слабыми импульсами: в [8,9] оптические свойства предлагалось наблюдать путем двухфотонного возбуждения биекситонов из основного состояния кристалла, а в настоящей работе — путем однофотонного возбуждения экситонов. Принципиальный результат — возникновение расщепления Ауслера–Таунса на экситонах и биекситонах — обусловлен действием накачки и поэтому имеет место в обеих работах. Что касается спектральных форм полос поглощения, то они в этих

работах качественно одинаковы, однако отличаются в деталях. Кроме того, в [8,9] в отличие от настоящей работы вычислялась восприимчивость $\chi^{(3)}$. В обеих работах предполагается, что интенсивность зондирующего импульса настолько мала, что он не изменяет энергетического спектра полупроводника, а лишь регистрирует те изменения оптических свойств кристалла, которые возникают под действием мощного импульса накачки в области M -полосы.

Сравним полученные здесь результаты с результатами экспериментальных исследований оптических свойств полупроводников в экситонной области спектра в присутствии мощной накачки. Выше отмечалось, что результаты данной работы качественно совпадают с результатами наблюдений спектров поглощения в [7]. Отметим также, что имеет место качественное совпадение наших результатов с результатами исследования спектров люминесценции в квантовых точках на InGaAs [16], а именно: 1) возникновение расщепления Ауслера–Таунса, образование дублета; 2) изменение величины расщепления при изменении интенсивности волны накачки и ее расстройки резонанса; 3) совпадение пиков полос поглощения (люминесценции); 4) линейная зависимость частоты Раби от амплитуды поля накачки. Как в [7], так и в [16] наблюдались изменения полос поглощения в зависимости от расстроек резонанса δ и δ_l при фиксированной амплитуде накачки f_0 , представленные на рис. 5. В [17] наблюдались Раби-осцилляции в полупроводниковых квантовых ямах. Экспериментально также было подтверждено, что частота этих осцилляций пропорциональна амплитуде поля накачки.

Оценим дипольный момент $\mu = \hbar\sigma$ экситонного перехода, используя (6) и экспериментальные данные из [16], где утверждается, что при интенсивности возбуждения J_0 , равной 18 kW/cm^2 , расщепление Ауслера–Таунса $\hbar\Omega$ оказалось равным $93 \text{ } \mu\text{eV}$. Поскольку $J_0 = cE_0^2/4\pi$, то $\mu = \frac{1}{4} \hbar\Omega \sqrt{c/\pi J_0} \approx 3 \cdot 10^{-17} \text{ CGSE} = 30 \text{ D}$. При этом частота нутации оказывается равной $1.5 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$.

Таким образом, полученные теоретические результаты позволяют проводить более детальные исследования не только абсорбционных оптических свойств полупроводников в экситонной области спектра, но также и дисперсионных свойств в режиме *pump-probe*.

Список литературы

- [1] R. Leonelli, A. Manar, J.B. Grun, B. Hönerlage. Phys. Rev. B **45**, 4141 (1992).
- [2] G.O. Smith, E.J. Mayer, J. Kuhl, K. Ploog. Solid State Commun. **92**, 325 (1994).
- [3] G. Finkelstein, S. Bar-Ad, O. Carmel, I. Bar-Joseph, Y. Levinson. Phys. Rev. B **47**, 12 964 (1993).
- [4] D. Hulin, M. Joffre. Phys. Rev. Lett. **65**, 3425 (1990).
- [5] N. Peyghambarian, H.M. Gibbs, J.L. Jewell, A. Antonetti, A. Migus, D. Hulin, A. Mysyrowicz. Phys. Rev. Lett. **53**, 2433 (1984).
- [6] A. von Lehmen, D.S. Chemla, J.E. Zucker, J.P. Heritage. Opt. Lett. **11**, 609 (1985).

- [7] R. Shimano, M. Kuwata-Gonokami. Phys. Rev. Lett. **72**, 530 (1994).
- [8] П.И. Хаджи, А.В. Коровай, Д.В. Ткаченко. ФТТ **44**, 774 (2002).
- [9] P.I. Khadzhi, A.V. Corovai, O.V. Korovai, D.V. Tkachenko. Moldavian J. Phys. Sci. **1**, 152 (2002).
- [10] E. Hanamura. Phys. Rev. B **44**, 8514 (1991).
- [11] С.А. Москаленко, В.Г. Павлов, В.Р. Мисько. ФТТ **40**, 924 (1998).
- [12] S.A. Moskalenko, D.W. Snoke. Bose–Einstein condensation of excitons and biexcitons and coherent nonlinear optics with excitons. Cambridge University Press (2000).
- [13] G.S. Agarwal. Phys. Rev. A **51**, R2711 (1995).
- [14] П.И. Хаджи, Д.В. Ткаченко. ФТТ **40**, 934 (1998).
- [15] П.И. Хаджи. Нелинейные оптические процессы в системе экситонов и биэкситонов в полупроводниках. Штиинца, Кишинев (1985).
- [16] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara, H. Ando. Phys. Rev. Lett. **87**, 246 401 (2001).
- [17] A. Schülzgen, R. Binder, M.E. Donovan, M. Lindberg, K. Wandke, H.M. Gibbs, G. Khitrova, N. Peyghambarian. Phys. Rev. Lett. **82**, 2346 (1999).