

Оптические свойства полупроводника при двухфотонном возбуждении биэкситонов мощным импульсом накачки и однофотонном зондировании в области М-полосы

А.В.Коровай, П.И.Хаджи

Показано, что в условиях двухфотонного возбуждения биэкситонов из основного состояния кристалла фотонами мощного импульса имеет место усиление слабого пучка лазерного излучения в области М-полосы.

Ключевые слова: экситон, биэкситон, восприимчивость, накачка, зондирование.

В связи с экспериментальными исследованиями оптического штарк-эффекта в экситонной области спектра особую значимость приобрел метод возбуждение – зондирование. Он основан на использовании двух пучков лазерного излучения: мощного пучка накачки и слабого, зондирующего пучка. Слабый пучок зондирует изменения оптических свойств кристалла под действием мощного пучка накачки, определяющиеся амплитудой и частотой поля накачки и параметрами кристалла.

Этим методом исследовались кинетика излучательной рекомбинации экситонов, нелинейный отклик системы экситонов и биэкситонов большой плотности [1–3], красный и голубой сдвиги экситонной полосы в условиях пикосекундной накачки [4–7], аналог эффекта Аутлера – Таунса на биэкситонах в CuCl [8]. В работе [8] наблюдалось расщепление биэкситонной полосы поглощения в CuCl на две линии между Z_3 -экситонным поляритоном и биэкситонным состоянием при больших энергиях 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 М-полосы поглощения, который смешивает состояния экситон плюс фотон накачки и биэкситон. По расщеплению авторы [8] определили соответствующий дипольный момент перехода в области М-полосы и экспериментально доказали, что спектры полос двухфотонного поглощения в значительной степени определяются интенсивностью и частотой импульса накачки.

В последние годы усилия исследователей были направлены на построение удовлетворительной теории метода возбуждение – зондирование для системы экситонов и биэкситонов большой плотности [9–12]. В [12] показано, что восприимчивости полупроводника в экситонной области спектра при учете экситон-фотонного и упругого экситон-экситонного взаимодействий характеризуются бистабильным поведением в зависимости от частоты и

интенсивности импульса накачки, а также от частоты зондирующего импульса.

Анализ результатов эксперимента [8] наводит на мысль о предложении альтернативного подхода в рамках той же системы. Пусть мощный импульс накачки с амплитудой поля E_0 и частотой $\omega_{\text{las}} \approx \Omega_0/2$ возбуждает биэкситоны из основного состояния кристалла в условиях двухфотонного поглощения (Ω_0 – частота биэкситонного уровня). Предполагаем, что зондирующий импульс с амплитудой поля E и частотой $\omega \approx \omega_M = \Omega_0 - \omega_0$ действует в области М-полосы (полосы оптической экситон-биэкситонной конверсии), где ω_0 – частота экситонного перехода (рис.1).

Таким образом, назначение пучков по сравнению с [8] меняется на обратное: пучок, который в [8] играет роль накачки, мы предлагаем использовать как зондирующий, а зондирующий пучок из [8] превращаем в пучок накачки, изменяя соответствующим образом их интенсивности. Гамильтониан взаимодействия в резонансном приближении, содержащем член двухфотонного возбуждения биэкситонов полем E_0 мощного импульса и член оптической экситон-биэкситонной конверсии полем E слабого импульса, можно записать в следующем виде [13]:

$$H = -\hbar\mu(b^+E_0^+E_0^+e^{-2i\omega_{\text{las}}t} + bE_0^-E_0^-e^{2i\omega_{\text{las}}t}) - \hbar\sigma(a^+bE^-e^{i\omega t} + ab^+E^+e^{-i\omega t}), \quad (1)$$

где a, b – амплитуды экситонной и биэкситонной волн поляризованности среды соответственно; $E_0^+(E^+)$ и $E_0^-(E^-)$ – положительно- и отрицательно-частотные компоненты поля накачки (зондирующего излучения) соответственно; σ и μ – константы оптической экситон-биэкситонной конверсии и двухфотонного возбуждения биэкситонов из основного состояния кристалла соответственно [13–15].

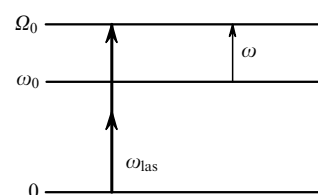


Рис.1. Энергетический спектр полупроводника и схема квантовых переходов.

Приднестровский государственный университет им. Т.Г.Шевченко, физико-математический факультет, Молдова, 278000 Тирасполь, ул. 25 Октября, 128; e-mail: tdsu@tirastel.md

Поступила в редакцию 4 июня 2001 г., после доработки – 22 августа 2001 г.

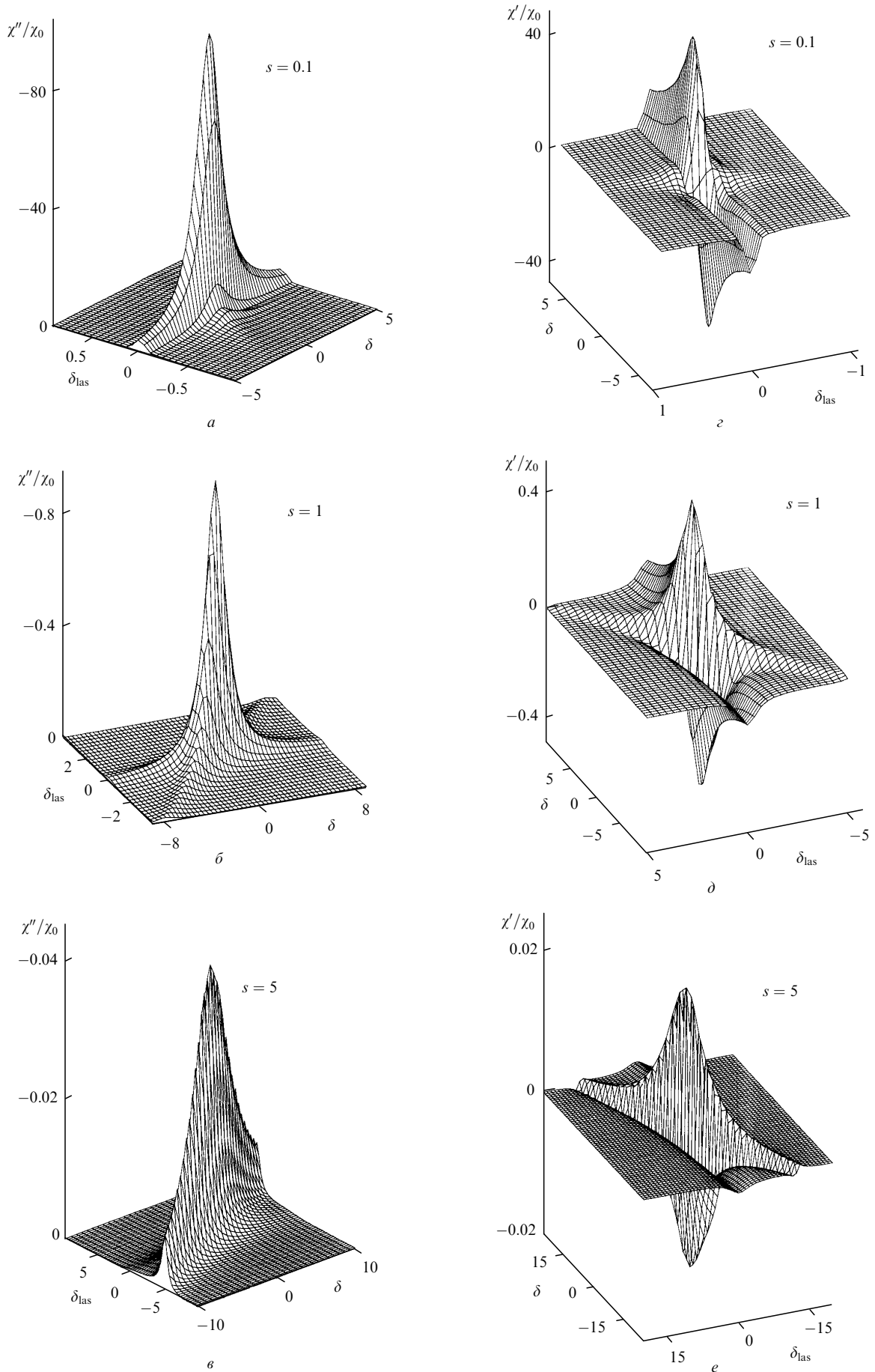


Рис.2. Профили абсорбционной (χ'') и дисперсионной (χ') компонент в плоскости расстройк резонансов δ, δ_{las} при разных s .

Предполагая состояния экситонов, биэкситонов и фотонов макрозаполненными, из (1) легко получить гайзенберговские (материальные) уравнения для амплитуд a и b :

$$i\dot{a} = (\omega_0 - i\gamma_1)a - \sigma b E^- e^{i\omega t}, \quad (2)$$

$$i\dot{b} = (\Omega_0 - i\gamma_2)b - \sigma a E^+ e^{-i\omega t} - \mu E_0^+ E_0^+ e^{-2i\omega_{\text{las}} t}, \quad (3)$$

где γ_1 и γ_2 – феноменологические константы, учитывающие затухание экситонных и биэкситонных уровней энергии соответственно вследствие рассеяния.

Изучим отклик системы в первом порядке теории возмущения по амплитуде E слабого импульса в стационарном режиме. Решения уравнений (2), (3) ищем в виде

$$a = A e^{-i(2\omega_{\text{las}} - \omega)t} + A^* e^{i(2\omega_{\text{las}} - \omega)t}, \quad (4)$$

$$b = B e^{-2i\omega_{\text{las}} t} + B^* e^{2i\omega_{\text{las}} t}, \quad (5)$$

где A и B – не зависящие от времени амплитуды. Подставляя (4), (5) в (2), (3), получаем для амплитуд A и B следующие выражения:

$$A = -\frac{\sigma B E^-}{2\omega_{\text{las}} - \omega - \omega_0 + i\gamma_1}, \quad B = -\frac{\mu E_0^+ E_0^+}{2\omega_{\text{las}} - \Omega_0 + i\gamma_2}. \quad (6)$$

Так как поляризованность среды $P^+ = \chi E^+$ по отношению к полю зондирующего импульса равна $\hbar \sigma a^+ b e^{i\omega t}$, то, учитывая (6), для комплексной восприимчивости среды $\chi = \chi' + i\chi''$ получаем

$$\frac{\chi'}{\chi_0} = -\frac{2\delta_{\text{las}} - \delta}{(4\delta_{\text{las}}^2 + s^2)[(2\delta_{\text{las}} - \delta)^2 + 1]}, \quad (7)$$

$$\frac{\chi''}{\chi_0} = -\frac{1}{(4\delta_{\text{las}}^2 + s^2)[(2\delta_{\text{las}} - \delta)^2 + 1]}, \quad (8)$$

где $\chi_0 = \hbar \sigma^2 \mu^2 E_0^4 / \gamma_1^3$; $\delta = \Delta / \gamma_1$; $\delta_{\text{las}} = \Delta_{\text{las}} / \gamma_1$; $s = \gamma_2 / \gamma_1$; $\Delta = \omega - \omega_M$; $\Delta_{\text{las}} = \omega_{\text{las}} - \Omega_0 / 2$.

Из (7), (8) видно, что χ' и χ'' пропорциональны квадрату интенсивности накачки. Кроме того, из (8) следует, что $\chi'' < 0$ при любых расстройках резонанса как поля накачки, так и тестирующего поля. Следовательно, зондирующее поле не поглощается, а наоборот, усиливается. Коэффициент усиления зондирующего излучения пропорционален квадрату интенсивности импульса накачки. В отсутствие поля накачки зондирующее излучение проходит через кристалл как через абсолютно прозрачную среду, поскольку в среде нет ни экситонов, ни биэкситонов. При действии поля накачки система оказывается инвертированной по отношению к частоте перехода зондирующего излучения, поэтому и возникает его усиление.

Функция усиления χ'' состоит из произведения двух лоренцианов. Лоренциан $(4\delta_{\text{las}}^2 + s^2)^{-1}$ в (8) обусловлен двухфотонным поглощением поля накачки и определяет плотность образующихся биэкситонов, лоренциан $[(2\delta_{\text{las}} - \delta)^2 + 1]^{-1}$ ответствен за отрицательное «поглощение» (усиление) зондирующего излучения с учетом расстройок резонанса как поля накачки δ_{las} , так и поля зондирующего излучения δ . Отсюда следует, что спектральная форма полосы усиления определяется спектральными особенностями обоих лоренцианов. Так как второй лоренциан не содержит параметра s , то при малых s и $\delta_{\text{las}} \rightarrow 0$ его амплитуда гораздо меньше амплитуды первого и

он, по сути, «поглощается» первым лоренцианом. Таким образом, при малых s полоса усиления имеет малую полуширину по частоте накачки и большую полуширину по частоте зондирующего излучения. С ростом параметра s полуширина первого лоренциана возрастает и полоса усиления на плоскости $\delta, \delta_{\text{las}}$ становится ярко выраженной вдоль прямой $\delta = 2\delta_{\text{las}}$ (рис.2).

На рис.2 представлены спектральные зависимости (в плоскости расстройок резонанса $\delta, \delta_{\text{las}}$) дисперсионной и абсорбционной компонент восприимчивости кристалла. Восприимчивость χ'' представляет собой острый пик усиления кристалла. Поведение компоненты χ' также указывает на усиление зондирующего излучения. Из рис. 2, $z - e$ видно, что с ростом s происходит постепенный поворот профиля χ' на плоскости $\delta_{\text{las}}, \delta$, что обусловлено различными вкладками каждого из множителей в (7). Если накачка действует точно в резонансе с биэкситонным уровнем ($\delta_{\text{las}} = 0$), то из (8) следует, что абсорбционная компонента восприимчивости χ'' представляет собой лоренциан:

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

причем полуширина полосы усиления равна константе затухания экситонного уровня γ_1 .

Из (8) и рис.2 следует, что абсолютная величина отношения χ''/χ_0 в максимуме определяется параметром s : при $s = 0.1, 1$ и 5 оно соответственно равно $-90, -0.8$ и -0.04 . Аналогичный вывод справедлив и для экстремумов функции χ'/χ_0 .

Таким образом, компоненты восприимчивости среды в условиях двухфотонного возбуждения биэкситонов из основного состояния кристалла мощным импульсом накачки и зондирования слабым импульсом в области М-полосы предсказывают усиление слабого импульса. Ранее в [12] было показано, что зондирующий импульс в разных областях спектра может как поглощаться, так и усиливаться, что было обусловлено упругим экситон-экситонным взаимодействием. В нашем случае поглощение зондирующего импульса полностью отсутствует и имеет место только его усиление, что обусловлено инверсией системы на частоте зондирующего импульса, создаваемой импульсом накачки.

1. Leonelli R., Manar A., Grun J.B., Hönerlage B. *Phys.Rev.B*, **45**, 4141 (1992).
2. Smith G.O., Mayer E.J., Kuhl J., Ploog K. *Solid State Comms*, **92**, 325 (1994).
3. Finkelstein G., Bar-Ad S., Carmel O., Bar-Joseph I., Levinson Y. *Phys.Rev.Letts B*, **47**, 12964 (1993).
4. Hulin D., Joffre M. *Phys.Rev.Letts*, **65**, 3425 (1990).
5. Fröhlich D., Nothe A., Reimann K. *Phys.Rev.Letts*, **55**, 1335 (1985).
6. Peyghambarian N., Gibbs H.M., Jewell J.L., Antonetti A., Migus A., Hulin D., Mysyrowicz A. *Phys.Rev.Letts*, **53**, 2433 (1984).
7. Von Lehmen A., Chemla D.S., Zucker J.E., Heritage J.P. *Optics Letts*, **11**, 609 (1985).
8. Shimano R., Kuwata-Gonokami M. *Phys.Rev.Letts*, **72**, 530 (1994).
9. Москаленко С.А., Павлов В.Г. *ЖЭТФ*, **112**, 167 (1997).
10. Москаленко С.А., Павлов В.Г., Мисько В.Р. *ФТТ*, **40**, 924 (1998).
11. Agarwal G.S. *Phys.Rev.A*, **51**, R2711 (1995).
12. Хаджи П.И., Ткаченко Д.В. *ФТТ*, **40**, 934 (1998); *Proc.SPIE*, **3405**, 406 (1997).
13. Хаджи П.И. *Нелинейные оптические процессы в системе экситонов и биэкситонов в полупроводниках* (Кишинев, Штиинца, 1984).
14. Гоголин А.А., Рашба Э.И. *Письма в ЖЭТФ*, **17**, 690 (1973).
15. Hanamura E. *Solid State Comms*, **12**, 951 (1973); *J.Phys.Soc.Japan*, **39**, 506 (1975).