

06

О генерации (усилении) терагерцового излучения в процессе резонансного возбуждения экситонов в полупроводниках

© П.И. Хаджи, И.В. Белоусов, А.В. Коровай, Д.А. Марков

Институт прикладной физики АН Молдовы,
Кишинев, Молдова
Приднестровский государственный университет им. Т.Г. Шевченко,
Тирасполь, Молдова
E-mail: fmf_nokr@spsu.ru

Поступило в Редакцию 1 ноября 2011 г.

Предложен и изучен новый механизм генерации терагерцового излучения в полупроводниках, использующий квантовые переходы между двухэкситонным и биэкситонным состояниями в условиях однофотонного возбуждения экситонов из основного состояния кристалла.

Проблемы генерации терагерцового излучения в размерно-ограниченных полупроводниковых структурах привлекают в последние годы все больший интерес. Терагерцовое излучение наблюдалось при квантовых переходах в асимметричных связанных квантовых ямах [1–3], в сверхрешетках [4,5], в отдельно взятой квантовой яме как результат квантовых биений между экситонами с легкими и тяжелыми дырками [1]. На важную роль экситонных состояний в процессе генерации терагерцового излучения, особенно когда накачка действует в экситонной области спектра, указано в [1,2,6–8]. В [9] наблюдалась генерация терагерцового излучения в поляритонных спектрах благодаря ультрабыстрой модуляции частоты перехода между модой микрорезонатора и экситонным уровнем, а в [10] — поглощение этого излучения экситонными поляритонами в квантовых точках.

Мы предлагаем новый механизм генерации (усиления) терагерцового излучения в объемных либо размерно-ограниченных полупроводниках с использованием экситонного и биэкситонного состояний. Пусть падающий на полупроводник импульс резонансного лазерного

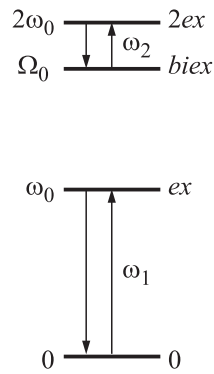


Рис. 1. Схема энергетических уровней и квантовых переходов.

излучения с частотой, равной частоте экситонного перехода ω_0 , возбуждает экситоны из основного состояния кристалла (рис. 1). Считаем экситонное состояние ex микрзаполненным. Вместе с ним макрозаполненным является также и двухэкситонное состояние $2ex$ на частоте $2\omega_0$. Эти состояния неоднократно использовались для интерпретации экспериментальных результатов по четырехволновому смешению в полупроводниках [11,12], а также при исследовании двухфотонного двухэкситонного поглощения света [13] и процесса фотораспада (фотодиссоциации) биэкситона [14]. Эти же состояния, по-видимому, могут играть важную роль в процессе генерации терагерцового излучения. Поскольку биэкситонное состояние $biex$ с собственной частотой $\Omega_0 = 2\omega_0 - \Omega_m$ расположено ниже двухэкситонного состояния с частотой $2\omega_0$ на величину Ω_m , то между состоянием $2ex$ и $biex$ в условиях однофотонного возбуждения экситонов из основного состояния кристалла возникает инверсия населенностей. Поэтому если запустить в кристалл слабый импульс терагерцового излучения с частотой ω_2 , равной Ω_m , то такое излучение будет усиливаться благодаря индуцированному сбросу инверсии.

Законы сохранения энергии и импульса для области частот двухэкситон-биэкситонного перехода имеют вид

$$2E_{ex}(\mathbf{k}_1) = E_{biex}(\mathbf{q}) + \hbar\omega_2, \quad 2\mathbf{k}_1 = \mathbf{q} + \mathbf{k}_2, \quad (1)$$

где $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_{phot}$, \mathbf{q} и \mathbf{k}_2 — волновой вектор экситона (фотона, возбуждающего его), биэкситона и терагерцового кванта с частотой ω_2

соответственно. Тогда для энергии кванта $\hbar\omega_2$ терагерцового излучения получаем выражение

$$\hbar\omega_2 = I_m + \frac{\hbar^2}{4m_{ex}} \mathbf{k}_2(2\mathbf{k}_1 + \mathbf{q}), \quad (2)$$

где m_{ex} — трансляционная масса экситона. При $\mathbf{k}_2 = 0$ из (1) и (2) находим $\mathbf{q} = 2\mathbf{k}_1$ и $\hbar\omega_2 = I_m$, т. е. энергия кванта терагерцового излучения точно равна энергии связи биэкситона.

Пусть в кристалле распространяются две плоские электромагнитные волны: одна с амплитудой поля E_1 и частотой ω_1 , резонансной частоте экситонного перехода ω_0 , а другая — с амплитудой E_2 и частотой ω_2 , резонансной частоте двухэкситон-биэкситонного перехода (рис. 1). Тогда гамильтониан взаимодействия обеих волн с экситонами и биэкситонами имеет вид

$$H = -\hbar g(a^+E_1^+ + aE_1^-) - \hbar\mu(a^+a^+bE_2^+ + b^+aaE_2^-), \quad (3)$$

где g — константа взаимодействия экситонов с полем волны, μ — константа оптического двухэкситон-биэкситонного перехода, a и b — амплитуды экситонной и биэкситонной волн поляризации среды соответственно, E_1^+ и E_2^+ (E_1^- , E_2^-) — положительно (отрицательно) — частотные компоненты полей волн.

Используя (3), легко получить гайзенберговские уравнения для амплитуд экситонной и биэкситонной волн. Решая эти уравнения в стационарном режиме, можно найти эти амплитуды и затем определить восприимчивости среды χ_1 и χ_2 для областей частот ω_0 и $2\omega_0 - \Omega_m$ соответственно:

$$\chi_1 = -\frac{\hbar g^2}{\Delta_1 + i\gamma_1 - \frac{2\mu^2 n |E_2|^2 (\Delta_1 - \Delta_2 - i\gamma_2)}{(2\Delta_1 - \Delta_2)^2 + \gamma_2^2}},$$

$$\chi_2 = -\frac{\hbar\mu^2 n^2 (2\Delta_1 - \Delta_2 + i\gamma_2)}{(2\Delta_1 - \Delta_2)^2 + \gamma_2^2}, \quad (4)$$

где γ_1 и γ_2 — феноменологически введенные константы затухания экситонного и биэкситонного состояний, описывающие уход экситонов и биэкситонов из когерентных мод, $\Delta_1 = \omega_1 - \omega_0$, $\Delta_2 = \omega_2 - I_m/\hbar$ —

расстройки резонанса для частот обеих волн по отношению к соответствующим частотам переходов, n — концентрация экситонов, которая определяется из выражения

$$n \left\{ \left[\Delta_1 - (2\Delta_1 - \Delta_2) \frac{2\mu^2 n |E_2|^2}{(2\Delta_1 - \Delta_2)^2 + \gamma_2^2} \right]^2 + \left[\gamma_1 + \gamma_2 \frac{2\mu^2 n |E_2|^2}{(2\Delta_1 - \Delta_2)^2 + \gamma_2^2} \right]^2 \right\} = g^2 |E_1|^2. \quad (5)$$

Из (4) следует, что при любых расстройках резонанса $\text{Im}\chi_1 = \chi_1'' > 0$, а $\text{Im}\chi_2 = \chi_2'' < 0$. Следовательно, при распространении в среде излучение на частоте ω_2 будет усиливаться, а на частоте ω_1 — ослабляться.

Простоты ради будем далее полагать константы затухания γ_1 и γ_2 одинаковыми, расстройки резонанса $\Delta_2 = 0$, а $\Delta_1 \neq 0$. Используя нормировки $\Delta_1 \equiv \Delta = \delta\gamma$, $E_{1,2} = C_0 F_{1,2}$, $n = N_0 m$, $x = x_0 \tau$, где $N_0 = g/m$, $C_0^2 = \gamma^2/\mu g$, $x_0 = \alpha^{-1}$, а α — коэффициент экситонного поглощения, уравнение (5) можно записать в виде

$$m \left\{ \delta^2 \left(1 - \frac{4m|F_2|^2}{4\delta^2 + 1} \right)^2 + \left(1 + \frac{2m|F_2|^2}{4\delta^2 + 1} \right)^2 \right\} = |F_1|^2. \quad (6)$$

Из (6) видно, что произведение нормированной плотности экситонов m и нормированной плотности терагерцового излучения $I_2 = |F_2|^2$ является бистабильной функцией интенсивности накачки $I_1 = |F_1|^2$ в экситонной области спектра. Как видно из (6), при расстройках резонанса δ , превышающих критическую расстройку δ_c ($\delta > \delta_c$), где $\delta_c = \sqrt{(31 + \sqrt{945})}/2/2$, имеет место бистабильность типа плотность–свет $mI_2(I_1 I_2)$ (рис. 2). Из (6) также следует, что решение для плотности экситонов m в зависимости от интенсивности накачки можно представить выражением вида $mI_2 = f(I_1 I_2)$, т.е. произведение mI_2 является функцией произведения интенсивностей I_1 и I_2 . Вводя функции $y = 2mI_2/(4\delta^2 + 1)$ и $z = 2I_1 I_2/(4\delta^2 + 1)$, уравнение (6) примет вид

$$y(\delta^2(1 - 2y)^2 + (1 + y)^2) = z. \quad (7)$$

Из (7) видно, что $z(y)$ при $\delta > \delta_c$ имеет максимум и минимум в точках

$$y_{\pm} = 2 \left(2\delta^2 - 1 \pm \sqrt{\delta^4 - \frac{31}{4}\delta^2 + \frac{1}{4}} \right) / (3(4\delta^2 + 1)) \quad (8)$$

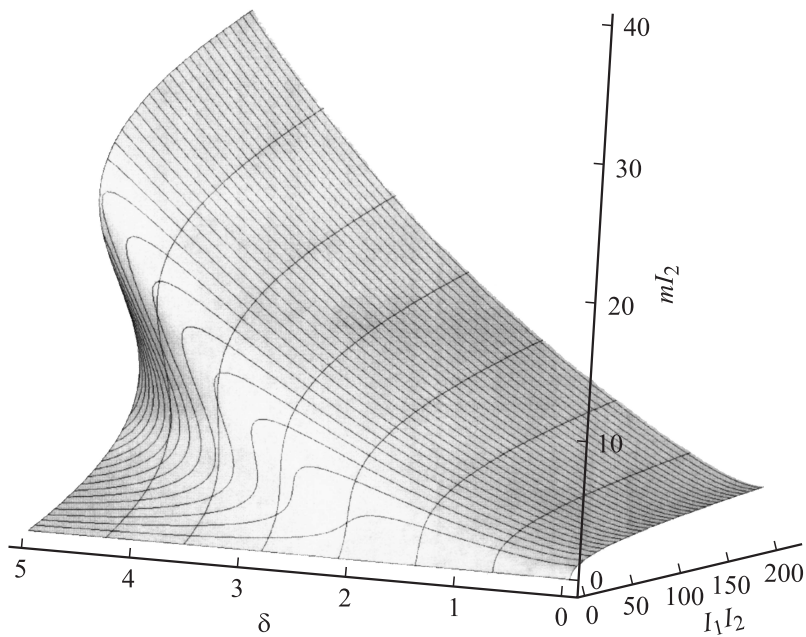


Рис. 2. Зависимость mI_2 от I_1I_2 и расстройки резонанса δ .

соответственно. При $\delta = \delta_c$ функция $z(y)$ имеет точку перегиба при $y = \frac{2}{3} \frac{2\delta_c^2 - 1}{4\delta_c^2 + 1}$, а при $\delta < \delta_c$ она является однозначной, монотонно возрастающей функцией в зависимости от y . Что касается функции $y(z)$, т. е. $mI_2(I_1I_2)$, то при $\delta > \delta_c$ в некоторой области значений интенсивности накачки I_1 она является трехзначной, т. е. одному и тому же значению произведения амплитуд полей I_1I_2 соответствуют три значения произведения mI_2 . Таким образом, можно утверждать, что плотность экситонов m может быть трехзначной функцией интенсивности накачки I_1 (рис. 2) при $\delta > \delta_c$. Из рис. 2 видно, что с ростом δ при $\delta < \delta_c$ функция $y(z)$ является нелинейной, монотонно растущей с ростом z , но однозначной. При $\delta = \delta_c$ возникает участок дифференциального усиления, а при $\delta > \delta_c$ имеет место трехзначная зависимость y от z . Это означает, что при $\delta > \delta_c$ плотность экситонов сначала медленно растет с ростом интенсивности накачки I_1 вдоль нижней ветви бистабильной кривой

до точки с вертикальной касательной в зависимости $y(z)$, в которой происходит скачок с нижней ветви на верхнюю, вдоль которой далее y медленно растет с ростом z . При уменьшении интенсивности накачки возникает скачок с верхней ветви бистабильной кривой на нижнюю, но в другой точке и далее происходит уменьшение y при уменьшении z . Если $\delta = \delta_c$, то при некотором значении z имеет место быстрый рост функции $y(z)$, т. е. возникает участок дифференциального усиления. Таким образом, при $\delta \geq \delta_c$ в кристалле существует два домена: домен высокой и домен низкой плотности экситонов и биэкситонов, граница раздела между которыми определяется интенсивностью накачки I_1 .

Из (7) видно, что возможен также и частотный гистерезис, который определяет неоднозначную зависимость плотности экситонов m от расстройки резонанса δ при фиксированном значении интенсивности накачки I_1 (рис. 2). Видно, что при фиксированном значении z (интенсивности накачки I_1) плотность экситонов сначала растет вдоль верхней ветви гистерезисной кривой $y(\delta)$ до точки с вертикальной касательной, в которой происходит скачок на нижнюю ветвь, вдоль которой функция $y(\delta)$ убывает с ростом δ . При уменьшении δ снова имеет место скачок с нижней ветви на верхнюю, но при меньших значениях δ и далее $y(\delta)$ уменьшается при уменьшении δ . Таким образом, если изменять частоту поля накачки, то в этом случае также могут существовать бистабильность и домены высокой и низкой плотности экситонов и биэкситонов в кристалле.

Из укороченных волновых уравнений для полей в приближении медленно меняющихся огибающих получаем следующий интеграл движения:

$$I_2 = I_{20} \exp\left(\frac{c}{2}(I_{10}^2 - I_1^2)\right), \quad (9)$$

связывающий интенсивности обеих волн в любой точке кристалла, где $c = \frac{\epsilon_{10} k_2 \mu g}{\epsilon_{20} k_1 \gamma^2}$. Интенсивность I_2/I_{20} волны на частоте ω_2 , распространяющейся в глубь среды, сначала быстро растет с ростом координаты, затем скорость роста постепенно уменьшается, так что на больших расстояниях интенсивность этой волны насыщается, принимая максимальное значение $I_{2\max}$, тогда как интенсивность волны накачки экспоненциально убывает. Вводя коэффициент усиления \tilde{g} этой волны по формуле $I_2(x) = I_{20} \exp(gx)$, получаем $\tilde{g}(x) = (\beta/x)(1 - \exp(-2\alpha_{10}x))$, где α_{10} — коэффициент экситонного поглощения. При $x = 0$ коэффициент усиления имеет максимальное значение $\tilde{g}(0) = 2\alpha_{10}\beta$, пропорциональное

квадрату начальной интенсивности волны на частоте ω_1 . С ростом x он монотонно убывает, обращаясь в нуль при $x \gg \alpha_{10}^{-1}$.

Таким образом, мы показали, что при накачке в экситонное состояние возникает инверсия населенностей между двухэкситонным и биэкситонным состояниями, на переходе между которыми возможна генерация терагерцового излучения. Интенсивность волны терагерцового излучения экспоненциально растет с ростом интенсивности накачки.

Исследования поддержаны проектом 10.820.03/BF в рамках сотрудничества Академии наук Молдовы и Министерства образования и науки Беларуси.

Список литературы

- [1] *Nuss M.C., Planken P.C.M. et al. // Appl. Phys. B. 1994. V. 58. P. 249.*
- [2] *Luo M.S.C., Chuang S.L., Planken P.C.M. et al. // IEEE J. Quantum Electron. 1994. V. 30. P. 1478.*
- [3] *Huggard P.G., Shaw C.J., Andrews S.R. et al. // Phys. Rev. Lett. 2000. V. 84. P. 1023.*
- [4] *Meier T., Thomas P., Koch S.W. // Phys. Low-Dimens. Struct. 1998. V. 3/4. P. 1.*
- [5] *Lachaine J.M., Hawton M., Sipe J.E., Dignam M.M. // Phys. Rev. B. 2000. V. 62. P. R4829.*
- [6] *Kavokin K.V. et al. // Appl. Phys. Lett. 2010. V. 97. P. 201111.*
- [7] *Chansungsun C., Tsang L., Chuang S.L. // J. Opt. Soc. Am. B. 1994. V. 11. P. 2508.*
- [8] *Savenko I.G., Shelykh I.A., Kaliteevski M.A. // Phys. Rev. Lett. 2011. V. 107. P. 027401.*
- [9] *Berstermann T., Scherbakov A.V., Akimo A.V. et al. // Phys. Rev. B. 2009. V. 80. P. 075301.*
- [10] *Vera-Ciro C.A., Delgadoi A., Gonzalez A. // arXiv 1004. 3940. 2010. V. 2.*
- [11] *Mayer E.J., Smith G.O., Heukeroth V. et al. // Phys. Rev. B. 1994. V. 50. P. 14730.*
- [12] *Svirko Iu.P., Kuwata-Gonokami M. // Phys. Rev. B. 2000. V. 62. P. 6912.*
- [13] *Петрашук К.Г., Руссу А.С., Хаджу П.И. // ФТТ. 1981. Т. 23. С. 3191.*
- [14] *Хаджу П.И., Петрашук К.Г. // ФТП. 1975. Т. 9. С. 2340.*