УДК 535.37

ОБРАЗОВАНИЕ НЕЛИНЕЙНЫХ ВРЕМЕННЫ́Х СТРУКТУР ПРИ ЛАЗЕРНОЙ ГЕНЕРАЦИИ В ОБЛАСТИ *М*-ПОЛОСЫ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ПОЛУПРОВОДНИКА

А. Х. Ротару, В. А. Залож

Показано, что динамика экситонов, фотонов и биэкситонов в области *М*-полосы описывается обобщенной системой уравнений Лоренца в четырехмерном фазовом пространстве. Предсказана возможность образования периодических и стохастических автоколебаний в системе.

В работах [1, 2] показано, что динамическая эволюция одномодового лазера в модели двухуровневых атомов описывается системой уравнений Лоренца в трехмерном фазовом пространстве. В частном случае к системе Лоренца сводится и задача о временно́й эволюции когерентных экситонов, фотонов и биэкситонов при экситон-биэкситонной конверсии [3, 4]. В более общем случае динамика однофотонной экситон-биэкситонной конверсии не сводится точно к модели двухуровневых атомов, хотя и обнаруживает с ней большое сходство. Дело в том, что система экситонов и биэкситонов отличается от неупорядоченной совокупности атомов или примесных центров в кристалле способом приготовления и организации начального состояния. Экситоны и биэкситоны являются переходными возбуждениями кристалла и характеризуются определенными временами жизни, в то время как система двухуровневых атомов находится в основном состоянии сколь угодно долго. Это обстоятельство является существенным и, как будет показано ниже, приводит к тому, что динамическая эволюция экситонов, фотонов и биэкситонов в условиях действия внешних накачек и затуханий описывается обобщенной системой уравнений Лоренца в четырехмерном фазовом пространстве.

В данной работе получена система нелинейных дифференциальных уравнений, описывающая динамику однофотонной экситон-биэкситонной конверсии в области *М*-полосы люминесценции, приведены ее простейшие бифуркационные свойства и произведен численный эксперимент. Показано, что в зависимости от параметров задачи в системе возможны как периодические, так и стохастические автоколебания. Обсуждается возможность экспериментального обнаружения указанных нелинейных временны́х структур в кристалле CuCl.

1. Гамильтониан задачи и вывод обобщенных уравнений Лоренца

Основа рассмотрения динамической эволюции системы экситонов, фотонов и биэкситонов в области *М*-полосы люминесценции полупроводника — это гамильтониан однородно распределенных в пространстве квазичастиц. Он состоит из следующих частей: гамильтониана свободных квазичастиц H_0; гамильтониана взаимодействия поля с экситонами и биэкситонами H_1; гамильтониана, учитывающего взаимодействия квазичастиц с тепловым резервуаром H_2; гамильтониана диссипативной системы и системы накачки H_3

$$H = H_0 + H_1 + H_2 + H_3, \tag{1}$$

где

$$H_0 = \hbar\omega_{ex} a_{\mathbf{k}}^{+} a_{\mathbf{k}} + \hbar\Omega_{biex} b_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{+} b_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} + \hbar\omega_{\mathbf{q}} c_{\mathbf{q}}^{+} c_{\mathbf{q}}, \tag{2}$$

$$H_1 = i\hbar f \left[b_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{+} a_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{q}} - a_{\mathbf{k}}^{+} c_{\mathbf{q}}^{+} b_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}\right], \tag{3}$$

$$H_2 = a_{\mathbf{k}}^{+} \sum_j \hbar\chi_1 \Gamma_{1j} + b_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{+} \sum_j \hbar\chi_2 \Gamma_{2j} + c_{\mathbf{q}}^{+} \sum_j \hbar\chi_3 \Gamma_{3j} + \text{э. с.}, \tag{4}$$

$a_{\mathbf{k}}^{+}$, $c_{\mathbf{k}}^{+}$, $b_{\mathbf{k}}^{+}$ — операторы рождения экситона, фотона и биэкситона с волновым вектором $\mathbf{k}$; $\hbar\omega_{ex}$ и $\hbar\Omega_{biex}$ — энергии образования экситона и биэкситона; $\hbar\omega_{\mathbf{q}}$ — энергия фотона; f — матричный элемент оптического превращения экситона в биэкситон; χ_i — константы взаимодействия квазичастиц с тепловым резервуаром; $\Gamma_{\mathbf{k}j}$ — оператор уничтожения возбуждения в тепловом резервуаре. Здесь и далее полагаем объем кристалла $V=1$.

Так как сила осциллятора экситон-биэкситонного превращения намного больше силы осциллятора экситонного перехода [5], то в дальнейшем мы не рассматриваем переходы из основного состояния кристалла в экситонное. Кроме того, предполагается, что энергия связи биэкситонов достаточно велика, как это имеет место в кристалле CuCl, так что положения полос M и A хорошо разделены. В (1) мы пренебрегли антирезонансными членами. Поскольку переменные теплового разервуара в дальнейшем исключаются и их действие будет проявляться только в фундаментальном уравнении в виде диссипативных членов, то определять их не будем. Кроме того, ввиду громоздкости вычислений мы не будем определять в представлении вторичного квантования гамильтониан внешней накачки, а на определенном этапе учтем взаимодействие активного вещества с подсистемой накачки феноменологически по аналогии с теорией лазеров в модели двухуровневых атомов [6]. Будем также считать, что выделенные нами моды слабо связаны с термостатом, что позволяет пренебречь обратным воздействием выделенных мод на резервуар. В этом приближении можно найти управляющее уравнение для матрицы плотности системы. Следуя [6, 7], для матрицы плотности получаем

$$\begin{aligned} d\rho/dt = &-i\omega_{ex}[a^{+}a, \rho] - i\Omega_{biex}[b^{+}b, \rho] - i\omega_{\mathbf{q}}[c^{+}c, \rho] - f\left[(c^{+}a^{+}b - b^{+}ac), \rho\right] + \\ &+ A_1([a\rho, a^{+}] + [a, \rho a^{+}]) + A_2([a^{+}\rho, a] + [a^{+}, \rho a]) + B_1([b\rho, b^{+}] + [b, \rho b^{+}]) + \\ &+ B_2([b^{+}\rho, b] + [b^{+}, \rho b]) + C_1([c\rho, c^{+}] + [c, \rho c^{+}]) + C_2([c^{+}\rho, c] + [c^{+}, \rho c]), \end{aligned} \tag{5}$$

где

$$A_{1,2} = \pi \sum_j |\chi_1|^2 \begin{Bmatrix} [1 + \bar{n}(\omega_j)] \\ \bar{n}(\omega_j) \end{Bmatrix} \delta(\omega_{ex} - \omega_j),$$

$$B_{1,2} = \pi \sum_j |\chi_2|^2 \begin{Bmatrix} [1 + \bar{n}(\omega_j)] \\ \bar{n}(\omega_j) \end{Bmatrix} \delta(\Omega_{biex} - \omega_j),$$

$$C_{1,2} = \pi \sum_j |\chi_3|^2 \begin{Bmatrix} [1 + \bar{n}(\omega_j)] \\ \bar{n}(\omega_j) \end{Bmatrix} \delta(\omega_{\mathbf{q}} - \omega_j),$$

$\bar{n}(\omega_j)$ — тепловые населенности резервуара. Здесь и далее опускаем индексы волновых векторов.

Представим матрицу плотности в виде разложения по обобщенным когерентным состояниям Глаубера [8]

$$\rho(t) = \int P(\alpha_i, \beta_i)\, \lambda(\alpha_i, \beta_i)\, d\mu, \tag{6}$$

где $a \to \alpha_1$; $c \to \alpha_2$; $b \to \alpha_3$; $a^{+} \to \beta_1$; $c^{+} \to \beta_2$; $b^{+} \to \beta_3$; $P(\alpha_i, \beta_i)$ — обобщенная функция Глаубера; $\lambda(\alpha_i, \beta_i) = |\alpha\rangle\langle\beta^*| / \langle\beta^*|\alpha\rangle$ — проекционный оператор; $|\alpha\rangle$, $|\beta\rangle$ — когерентные состояния Глаубера; $d\mu$ — мера интегрирования. Подставляя (5) в (6), получаем уравнение Фоккера—Планка для $P(\alpha_i, \beta_i)$

$$\frac{\partial P(\alpha_i,\ \beta_i,\ t)}{\partial t}=\left\{\frac{\partial}{\partial\alpha_1}(i\omega_{ex}\alpha_1+\gamma_1\alpha_1+f\alpha_3\beta_2)+\frac{\partial}{\partial\alpha_2}(i\omega_q\alpha_2+\gamma\alpha_2+f\beta_1\alpha_3)+\right.$$
$$+\frac{\partial}{\partial\alpha_3}(i\Omega_{biex}\alpha_3+\gamma_2\alpha_3-f\alpha_1\alpha_2)-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial\alpha_1\partial\alpha_2}(2f\alpha_3)+\frac{1}{2}\frac{\partial^2\gamma_3}{\partial\alpha_1\partial\beta_1}+\frac{1}{2}\frac{\partial^2(2C_2)}{\partial\alpha_2\partial\beta_2}+$$
$$\left.+\frac{1}{2}\frac{\partial^2\gamma_4}{\partial\alpha_3\partial\beta_3}+\text{э. с.}\right\}P(\alpha_i,\ \beta_i,\ t), \tag{7}$$

где $\gamma_1=A_1-A_2$, $\gamma_2=B_1-B_2$, $\gamma=C_1-C_2$, $\gamma_3=2A_2$, $\gamma_4=2B_2$.

Как известно, процессу Фоккера—Планка можно сопоставить ланжевеновский процесс. Тогда уравнение (7) эквивалентно системе стохастических дифференциальных уравнений [9]. Поскольку в дальнейшем нас интересует детерминированная динамика когерентных квазичастиц, мы пренебрегаем в уравнениях Ланжевена флуктуационными членами. Это означает, что динамика классических траекторий однофотонного лазера при биэкситон-экситонной конверсии определяется только потоковой частью уравнения (7).

Вводя в рассмотрение полное число экситонов и биэкситонов $F=\beta_3\alpha_3+\beta_1\alpha_1$, разность населенностей $S=\beta_3\alpha_3-\beta_1\alpha_1$, поляризацию $\tilde{Q}=\beta_1\alpha_3$, амплитуду поля $\tilde{c}=\alpha_3$ и представляя $\tilde{c}$ и $\tilde{Q}$ в виде

$$\tilde{c}=c\exp[-i\omega_q t],\qquad \tilde{Q}=Q\exp[-i\omega_q t],$$

в случае точного резонанса ($\omega_q=\Omega_{biex}-\omega_{ex}$) из потоковой части (7) легко получить

$$dc/dt=-\gamma c-fQ,\quad dQ/dt=-(\gamma_1+\gamma_2)Q-fSc, \tag{8), (9}$$
$$dS/dt=-(\gamma_1+\gamma_2)S+(\gamma_1-\gamma_2)F+2f(Qc^*+Q^*c)+g_2-g_1, \tag{10}$$
$$dF/dt=-(\gamma_1+\gamma_2)F+(\gamma_1-\gamma_2)S+g_2+g_1, \tag{11}$$

где g_1, g_2 — внешние накачки в экситонный и биэкситонный уровни соответственно, которые, как уже отмечалось, введены в уравнения феноменологически. Отметим, что уравнения (8)—(11) могут быть получены и из гайзенберговских уравнений движения для соответствующих операторов [10], а также в рамках полуклассической теории [3, 4]. При этом константы затухания γ_i вводятся феноменологически и учитывают все виды ухода квазичастиц из соответствующих когерентных мод.

Вводя обозначения

$$c_0=\frac{\gamma_1+\gamma_2}{2f},\quad Q_0=-\frac{\gamma(\gamma_1+\gamma_2)}{2f^2},\quad S_0=\frac{\gamma(\gamma_1+\gamma_2)}{f^2},\quad F_0=\frac{g_1+g_2}{\gamma_1+\gamma_2}+\frac{\gamma(\gamma_1-\gamma_2)}{f^2},$$
$$\sigma=\frac{\gamma}{\gamma_1+\gamma_2},\quad \alpha=\frac{\gamma_1-\gamma_2}{\gamma_1+\gamma_2},\quad \beta=\frac{g_2-g_1}{g_2+g_1},\quad R=\frac{f^2(g_2\gamma_1-g_1\gamma_2)}{2\gamma\gamma_1\gamma_2(\gamma_1+\gamma_2)},\quad P=R\frac{1+\alpha\beta}{\alpha+\beta}$$

и сделав замену переменных

$$x=\frac{c}{c_0},\quad y=\frac{Q}{Q_0},\quad D=\frac{S}{S_0},\quad z=R-D,\quad f=\frac{F}{F_0},\quad T=(\gamma_1+\gamma_2)t,$$

для безразмерных амплитуды поля x, поляризации среды y, разности населенностей z и полного числа частиц f получаем

$$\frac{dx}{dT}=-\sigma x+\sigma y,\quad \frac{dy}{dT}=-y+(R-z)x,\quad \frac{dz}{dT}=-z+xy-\alpha P(f-1), \tag{12)—(14}$$
$$\frac{df}{dT}=-f+1+\frac{\alpha}{P}z. \tag{15}$$

Система уравнений (12)—(15) полностью описывает динамическую эволюцию когерентных экситонов, фотонов и биэкситонов в области M-полосы люминесценции в условиях действия внешних накачек и затуханий в четырехмерном фазовом пространстве. Она является обобщенным аналогом системы уравнений Лоренца на случай систем двухуровневого типа в конденсированных средах, требующих предварительной подготовки. В случае $\gamma_1=\gamma_2$ ($\alpha=0$) и $f=f_0$ уравнения (12)—(15) переходят в обычную систему уравнений Лоренца с константой $b=1$. Этот частный случай рассмотрен нами в [3, 4, 10].

В настоящее время отсутствуют алгоритмы для получения аналитических решений систем нелинейных дифференциальных уравнений общего вида. Поэтому динамику уравнений (12)—(15) мы исследуем качественными и численными методами.

Анализ решений уравнений (12)—(15) связан с решением вопроса об их устойчивости. Уравнения (12)—(15) имеют три критические точки: C_0 (0,

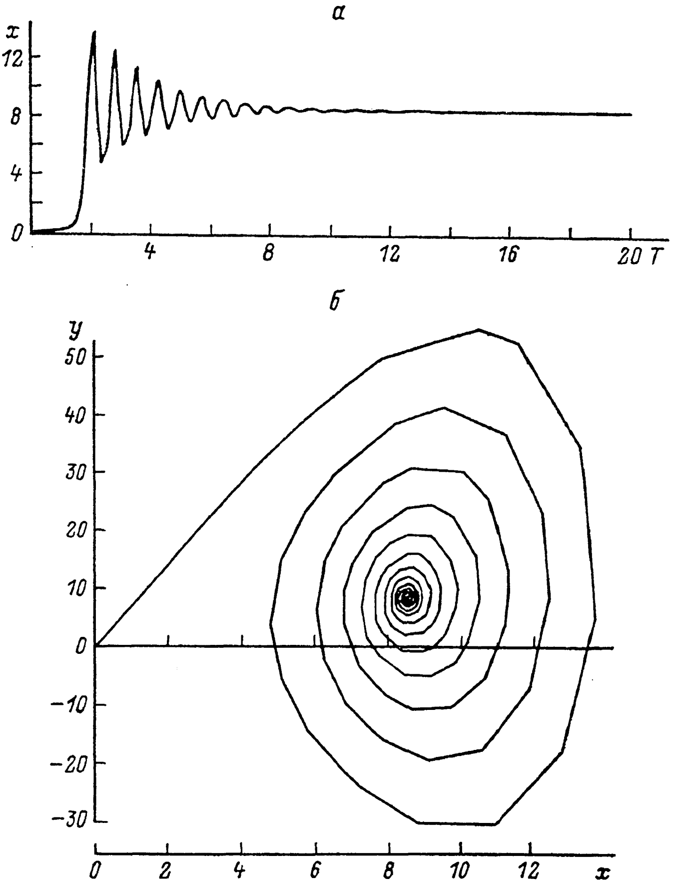

Рис. 1. Переход системы к состоянию стационарной лазерной генерации при $R=200$, $\sigma=1$, $\alpha=0.8$ (*а*). Проекция траектории на плоскость в фазовом пространстве с координатными осями поле—поляризация среды (*б*).

0, 1), $C_+\left(\sqrt{R-1},\ \sqrt{R-1},\ 1,\ 1+\alpha/P\right)$, $C_-\left(-\sqrt{R-1},\ -\sqrt{R-1},\ 1,\ 1+\alpha/P\right)$. Стационарная точка C_0 соответствует безызлучательному состоянию системы. При $0<R<1$ она является устойчивым узлом. При $R>1$ C_0 теряет свою устойчивость. При этом появляются точки C_+ и C_-. В случае $\sigma<2$ для всех значений эффективной накачки $R>1$ стационарные точки C_+ и C_- устойчивы (устойчивые фокусы). Если $\sigma>2$, то существует некоторое значение параметра накачки $R_{кр}=(-B-\sqrt{B^2-4AC})/2A$, где $A=(2\sigma+1)\ (2-\sigma)\ (1-\alpha^2)$, $B=2(\sigma+3)[2\delta+1)(\sigma+1)-\sigma\ (\sigma+3)]+\sigma\ (1-\alpha^2)\ (3\sigma-1)$, $C=\sigma\ [4\ (\sigma+3)-\sigma\ (1-\alpha^2)]$, ниже которого $1<R<R_{кр}$ точки C_+ и C_- всегда устойчивы. В этом случае в системе возможна устойчивая стационарная лазерная генерация.

В случае $R>R_{кр}$ и $\sigma>2$ все три критические точки теряют свою устойчивость. При этом, как следует из (12)—(15), четырехмерный фазовый объем стремится к нулю при $T\to\infty$ с характерным временем порядка

$(\sigma+3)^{-1}$. В этом случае в фазовом пространстве системы уравнений (12)—(15) возможно образование предельных циклов, торов либо странных аттракторов.

На рис. 1—3 приведены зависимости амплитуды фотонного поля $x\ (T)$ и проекции фазовых траекторий на плоскости с координатными осями поле — поляризация среды. Из этих рисунков видно, что в зависимости от параметров системы при биэкситон-экситонной конверсии в области M-полосы люминесценции полупроводника возможны либо стационарная (рис. 1), либо нестационарная лазерные генерации (рис. 2, 3). Последняя в зави-

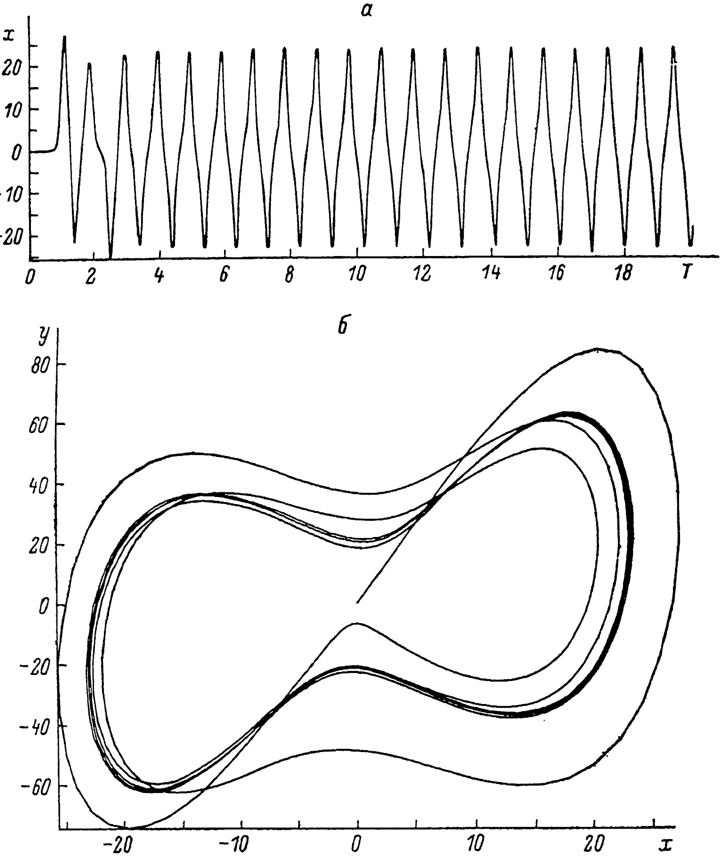

Рис. 2. Временна́я эволюция $x\ (T)$ в режиме возникновения предельного цикла $R=500$ ($R_{кр}=51.58$), $\sigma=3$, $\alpha=0.8$ (*а*). Проекция решений системы уравнений (12)—(15) на плоскость (x, y). Возникновение предельного цикла в виде восьмерки (*б*).

симости от параметров системы может иметь как регулярный, так и стохастический характер. Периодические автоколебания соответствуют предельному циклу в виде восьмерки, а стохастические — странному аттрактору. Возникающая динамическая стохастичность является внутренним свойством системы и не связана с действием внешних флуктуаций.

В качестве примера возможного экспериментального наблюдения указанных временны́х структур рассмотрим кристалл CuCl, для которого справедлива выбранная нами модель. Благодаря малому радиусу экситонов в CuCl ($a_{ex} \sim 7 \cdot 10^{-7}$ см) в нем можно создавать большие концентрации экситонов ($n_{ex} \sim 10^{19}$ см$^{-3}$) [11]. Простоты ради предположим, что внешняя накачка действует только в биэкситонный уровень ($g_2 \neq 0$, $g_1=0$). Для кристалла CuCl $\hbar^2 f^2=1.57 \cdot 10^{-16}$ мэВ$^2 \cdot$см^3, $\hbar\,\omega_{ex}=3202.7$ мэВ, $\hbar\Omega_{biex}=6372.5$ мэВ, $\hbar\gamma_1=0.03$ мэВ, $\hbar\gamma_2=0.3$ мэВ [12]. Как уже отмечалось, при $\sigma < 2$ в системе возможна стационарная лазерная генерация при любых $R > 1$, что соответствует интенсивности внешней накачки $I > I_1 \sim 10^{-2}$ МВт/см^2.

В случае $\sigma > 2$ и $R \geqslant R_{\text{кр}}$ ($I \geqslant I_2$ ~ 1 МВт/см^2) в системе возникают стохастические автоколебания (оптическая турбулентность). Наконец, при $\sigma > 2$ и $R \gg R_{\text{кр}}$ ($I_3 \sim 10$ МВт/см^2) в кристалле возможны нелинейные периодические автоколебания. Концентрации квазичастиц при этом в CuCl $n \sim 10^{15} \div 10^{18}$ см$^{-3}$. Отметим, что оптическая бистабильность в CuCl наблюдалась экспериментально при интенсивностях внешней накачки $I \sim$ $\sim 7 \div 14$ МВт/см^2 [13].

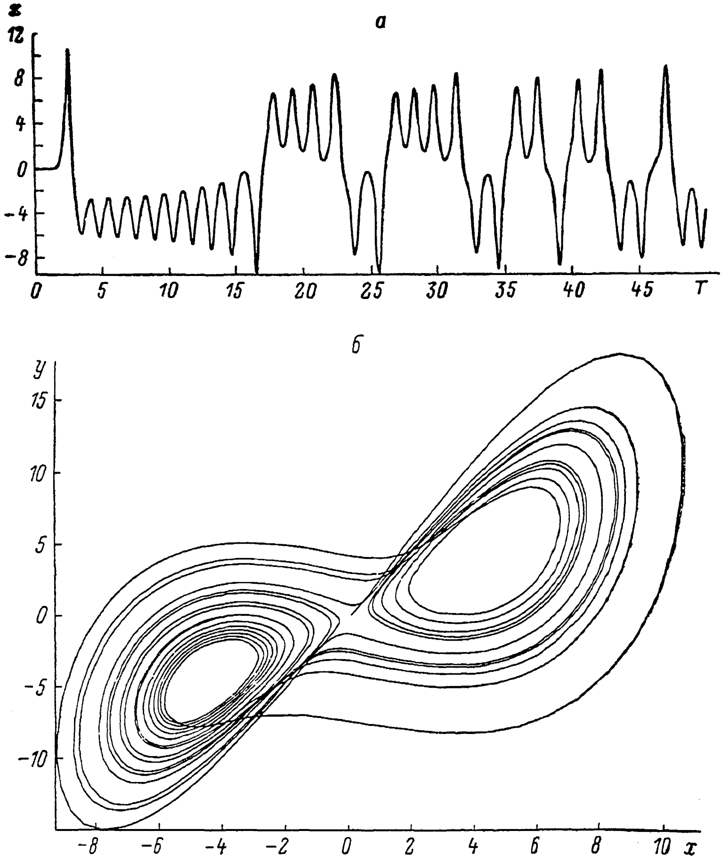

Рис. 3. Временна́я эволюция x (T) в случае возникновения странного аттрактора при $R=55$ ($R_{\text{кр}}=51.58$), $\sigma=3$, $\alpha=0.8$ (*а*). Фазовый портрет странного аттрактора на плоскость с координатными осями поле—поляризация среды (*б*).

Таким образом, приведенные оценки позволяют сделать вывод о реальной возможности наблюдения различных временны́х структур в режиме лазерной генерации M-полосы люминесценции полупроводника.

Система уравнений (12)—(15), которая описывает динамику классических лазерных траекторий в области M-полосы люминесценции, является богаче системы уравнений Лоренца. Здесь возможны возникновение жесткого и метастабильного хаоса, переход к хаосу через бифуркации удвоения периода, а также явление стохастического оптического гистерезиса. Отметим также, что аналогичные автомодуляционные колебания возможны и при внутри- и межсерийных экситонных переходах в полупроводниках.

Литература

[1] Haken H. // Phys. Lett. 1975. V. 53A. P. 77—80.
[2] Ораевский А. Н. // Квант. электр. 1981. Т. 8. № 1. С. 130—142.
[3] Rotaru A. H., Shibarshina G. D. // Phys. Lett. 1985. V. 101A. N 6. P. 292—294.
[4] Ротару А. Х. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 8. С. 2492—2496.
[5] Рашба Э. И. // ФТТ. 1974. Т. 8. № 7. С. 1241—1256.

[6] Арреки Ф., Скалли М., Хакен Г., Вайдлих В. Квантовые флуктуации излучения лазера. М., 1974. 236 с.
[7] Москаленко С. А., Ротару А. Х., Швера Ю. М. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 11. С. 2396—2400.
[8] Drummond P. D., Gardiner G. W. // J. Phys. A, Math. Gen. 1980. V. 13. P. 2353—2364.
[9] Хакен Х. Синергетика. М., 1980. 384 с.
[10] Ротару А. Х. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 11. С. 3282—3287.
[11] Certier M., Wecher C., Nikitine S. // J. Phys. Chem. Sol. 1969. V. 30. P. 2135—2141.
[12] Sung C. C., Bowdem C. M., Haus J. M., Chiw W. K. // Phys. Rev. A. 1984. V. 30. P. 1873—1881.
[13] Peyghambarian N., Gibbs H. M., Rushford M. C., Weinberger D. A. // Phys. Rev. Lett. 1983. V. 51. N 28. P. 1692—1695.

Институт прикладной физики АН МССР
Кишинев

Поступило в Редакцию
17 февраля 1988 г.
В окончательной редакции
25 октября 1988 г.