

## Экситонные полосы поглощения и усиления света в присутствии лазерного излучения

© С.А. Москаленко, В.Г. Павлов, В.Р. Мисько

Институт прикладной физики Академии наук Молдавии,  
MD-2028 Кишинев, Молдавия

Рассмотрены полосы поглощения и усиления слабого зондирующего сигнала в присутствии бозе-эйнштейновской конденсации экситонов, возникающей в неравновесных условиях в поле когерентного лазерного излучения. Показано, что поглощение света обусловлено квантовым переходом из основного состояния кристалла на квазиэкситонную ветвь спектра. Усиление сигнала происходит за счет перехода с квазиэнергетической ветви спектра в основное состояние кристалла.

Оптический Штарк-эффект в экситонной области спектра был изучен в ряде экспериментальных и теоретических работ [1–6]. Интерпретация наблюдаемого явления, предложенная Шмитт–Ринком, Чемла и Хаугом [3,4], основана на идее вынужденной бозе-эйнштейновской конденсации (БЭК) экситонов, индуцированной внешним когерентным лазерным излучением. В отличие от работы Келдыша и Козлова, посвященной спонтанной БЭК экситонов в электронно-дырочном описании [7], роль химического потенциала играет частота лазерного излучения. Вынужденная БЭК может быть реальной, но неравновесной [8], когда когерентные фотоны лазера возбуждают резонансные экситоны в зоне с тем же значением волнового вектора, либо виртуальной, когда частота лазерного излучения существенно отличается от частоты экситонного перехода [3–6]. Именно этот вариант был осуществлен экспериментально в работах [1–2], где энергия фотонов была меньше энергии нижайшего экситонного уровня. На опыте наблюдалось смещение экситонного уровня после включения ультракороткого лазерного импульса и его возвращение в исходное положение после выключения импульса.

Ниже мы изучим вероятность поглощения и усиления слабого зондирующего светового сигнала при переходе из основного состояния кристалла в экситонное состояние тогда, когда кристалл находится в поле интенсивного когерентного лазерного излучения, вызывающего когерентную макроскопическую поляризацию среды. Речь идет о вероятности перехода в условиях, когда рождается еще один экситон в присутствии большого числа реальных или виртуальных экситонов, созданных в стационарных условиях когерентным лазерным излучением. Присутствие лазерного излучения и когерентной поляризации среды есть тот важный фактор, который приводит к возможности усиления слабого сигнала и отличает данное экситонное поглощение от ранее изученного в невозбужденных кристаллах.

### 1. Вероятность истинного поглощения света

Вероятность поглощения света за вычетом вероятности его излучения дает вероятность истинного поглощения. После замены  $\delta$ -функций на лоренцианы найдем

искомую вероятность при  $T = 0$  в виде

$$P_{\text{net absorb}}(\mathbf{Q}) = \frac{2|\lambda_{\mathbf{k}_0+\mathbf{Q}}|^2}{\hbar} \left[ \frac{1}{|1 - |A_Q|^2|} \times \frac{\Gamma(\mathbf{Q})}{(\hbar c|\mathbf{k}_0 + \mathbf{Q}| - \hbar\omega_L - E_1(\mathbf{Q}))^2 + \Gamma^2(\mathbf{Q})} - \frac{|A_Q|^2}{|1 - |A_Q|^2|} \times \frac{\Gamma(-\mathbf{Q})}{(\hbar c|\mathbf{k}_0 + \mathbf{Q}| - \hbar\omega_L + E_1(-\mathbf{Q}))^2 + \Gamma^2(-\mathbf{Q})} \right]. \quad (1)$$

Коэффициенты  $A_k$  унитарного преобразования Боголюбова [9], с помощью которого была проведена диагонализация квадратичной части гамильтониана взаимодействующих со светом экситонов, зависят от расстройки резонанса  $\tilde{\Delta}$ , кинетической энергии экситона  $T_k$  смещения экситонного уровня  $L_k$  и  $\mathcal{E}(k)$  следующим образом:

$$A_k = \frac{\tilde{\Delta} + T_k + L_k - \mathcal{E}(k)}{L_k}. \quad (2)$$

Здесь введены обозначения:

$$\tilde{\Delta} = \hbar\omega_{\text{ex}}(\mathbf{k}_0) - \hbar\omega_L + L_0, \quad T_k = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\text{ex}}}, \quad L_k = \nu(k) \frac{N_{\mathbf{k}_0}}{V},$$

$$\mathcal{E}(k) = \sqrt{(\tilde{\Delta} + L_k + T_k)^2 - L_k^2}. \quad (3)$$

Расстройка резонанса  $\tilde{\Delta}$  определяется разницей между энергией перенормированного экситонного уровня  $\hbar\omega_{\text{ex}}(\mathbf{k}_0) + L_0$  и энергией фотона лазера, имеющего частоту  $\omega_L$  и волновой вектор  $\mathbf{k}_0$ ;  $\nu(k)$  есть константа экситон-экситонного взаимодействия, а  $n_{\mathbf{k}_0} = N_{\mathbf{k}_0}/V$  — плотность экситонов в конденсате. Выражение

$$\mathcal{E}(k) = \sqrt{(\tilde{\Delta} + L_k + T_k)^2 - L_k^2} \quad (4)$$

есть составная часть полной энергии элементарного возбуждения  $E(\mathbf{k})$ ,

$$E(\mathbf{k}) = \mathcal{E}(\mathbf{k}) + \hbar\mathbf{V}_s\mathbf{k}; \quad \mathbf{V}_s = \frac{\hbar\mathbf{k}_0}{m_{\text{ex}}}, \quad (5)$$

зависящей от скорости  $\mathbf{V}_s$  движения индуцированного конденсата. Эта скорость определяется импульсом фотона лазера  $\hbar\mathbf{k}_0$  и трансляционной массой экситона  $m_{\text{ex}}$ .

Для того, чтобы коэффициенты  $A_k$  удовлетворяли во всей области  $\mathbf{k}$ -пространства условию

$$|A_k| \leq 1, \quad (6)$$

необходимо выбрать такой знак перед квадратным корнем в (11), который совпадает со знаком выражения  $(\tilde{\Delta} + T_k + L_k)$ . Это решение будем обозначать через  $\mathcal{E}_1(k)$  и определим его по правилу

$$\text{sign } \mathcal{E}_1(k) = \text{sign}(\tilde{\Delta} + T_k + L_k). \quad (7)$$

В тех областях  $\hbar\omega = \hbar c|\mathbf{k}_0 + \mathbf{Q}|$ , где разность (1) положительна, имеет место истинное поглощение света, а там, где она отрицательна, имеет место истинное излучение или усиление света.

## 2. Анизотропия экситонных полос поглощения и излучения в когерентно поляризованном кристалле

Функция  $\mathcal{E}(k)$  была получена ранее в [6]. Однако коэффициенты  $A_k$  и вероятности квантовых переходов не были исследованы. Эти же выражения, рассмотренные как функции от  $|\mathbf{q} - \mathbf{k}_0|$ , зависят от ориентации вектора  $\mathbf{q}$  зондирующего света по отношению к вектору  $\mathbf{k}_0$  лазерного излучения, создающего когерентную макроскопическую поляризацию среды. Представляют интерес три возможные геометрии наблюдения коэффициента поглощения света, а именно  $\mathbf{q} \uparrow \uparrow \mathbf{k}_0$ ,  $\mathbf{q} \perp \mathbf{k}_0$  и  $\mathbf{q} \downarrow \uparrow \mathbf{k}_0$ , т.е. когда зондирующее излучение распространяется вдоль направления лазерного излучения, перпендикулярно или антипараллельно ему.

Модуль  $|\mathbf{q} - \mathbf{k}_0|/k_0$  принимает различные значения при одном и том же значении модуля  $q = xk_0$ , где  $\infty > x > 0$  в зависимости от ориентации вектора  $\mathbf{q}$  по отношению к вектору  $\mathbf{k}_0$ . Они равны  $|x - 1|$ ,  $\sqrt{x^2 + 1}$  и  $(x + 1)$  соответственно.

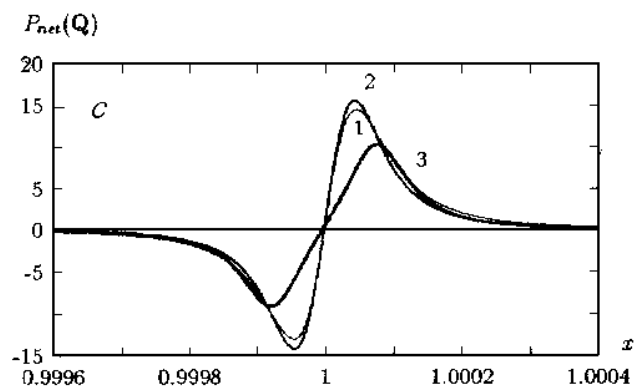
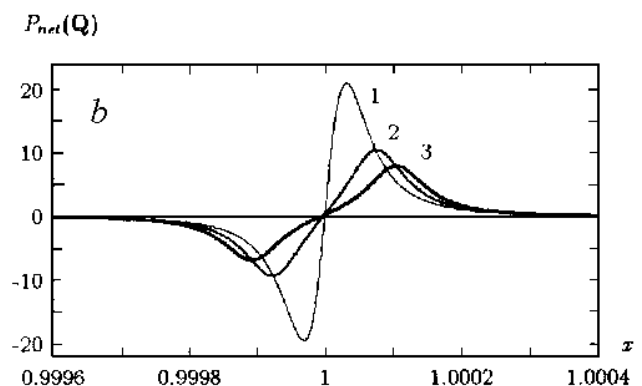
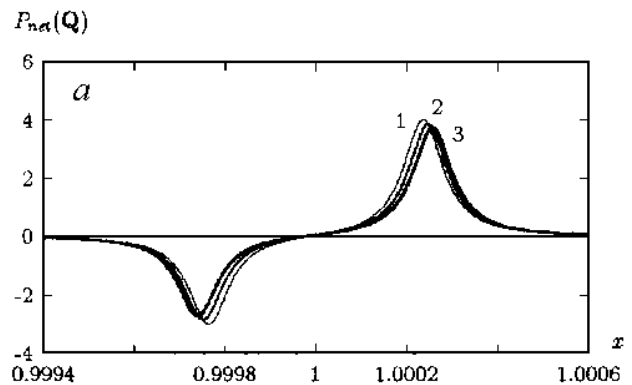
По этой причине энергетический спектр  $\mathcal{E}_1(\mathbf{q} - \mathbf{k}_0)$ , коэффициенты  $|A_{\mathbf{q}-\mathbf{k}_0}|$  и множитель  $(1 - |A_{\mathbf{q}-\mathbf{k}_0}|^2)^{-1}$  как функции от  $x$  найдены для трех ориентаций вектора  $\mathbf{q}$  по отношению к вектору  $\mathbf{k}_0$ . Зависимости от  $x$  означают в то же время зависимости от частоты поглощаемого света, поскольку  $\hbar\omega = \hbar c q = x\hbar c k_0 = x\hbar\omega_L$ , где  $x > 0$ . Эти зависимости найдены для определенной расстройки резонанса  $\tilde{\Delta}$  и содержат частотные зависимости  $\mathcal{E}_1(x)$ ,  $|A(x)|$  и  $(1 - |A(x)|^2)^{-1}$  для трех геометрий наблюдения.

Зависимость множителя  $(1 - |A(x)|^2)^{-1}$  имеет четко выраженную анизотропию. Она проявляется при положительной расстройке резонанса  $\tilde{\Delta} = L_0$  и составляет около 2%. При больших положительных значениях  $\tilde{\Delta}$  анизотропия становится исчезающе малой, т.к. коэффициенты  $|A_k|$  для экситоно-подобной ветви спектра становятся много меньше единицы. При  $\tilde{\Delta} = 0$  обозначается реальный, но неравновесный вынужденный бозе-конденсат экситонов с волновым вектором  $\mathbf{k}_0$ . Числа заполнения

экситонов  $n_{\mathbf{k}_0+\mathbf{k}}^{\text{ex}}$  при  $k \rightarrow 0$  становятся бесконечно большими, как это следует из функции распределения Бозе-Эйнштейна с химическим потенциалом, равным нулю. Возникает резкое отличие между числами заполнения

$$n_{\mathbf{k}_0+\mathbf{k}}^{\text{ex}} = n_q^{\text{ex}} = \frac{|A_{\mathbf{q}-\mathbf{k}_0}|^2}{1 - |A_{\mathbf{q}-\mathbf{k}_0}|^2}; \quad \mathbf{q} = \mathbf{k}_0 + \mathbf{k} \quad (8)$$

для случаев, когда вектор  $\mathbf{q}$  стремится к вектору  $\mathbf{k}_0$  или к вектору  $-\mathbf{k}_0$ . Поскольку коэффициенты поглощения света пропорциональны множителю  $(1 + n_q^{\text{ex}})$ , то отсюда возникает резкая анизотропия поглощения света.



Частотные зависимости  $P_{\text{net}}(\mathbf{Q})$  для трех ориентаций волнового вектора  $\mathbf{q}$  зондирующего света по отношению к волновому вектору  $\mathbf{k}_0$  лазерного излучения. 1 —  $\mathbf{q} \uparrow \uparrow \mathbf{k}_0$ , 2 —  $\mathbf{q} \perp \mathbf{k}_0$ , 3 —  $\mathbf{q} \downarrow \uparrow \mathbf{k}_0$  при различных расстройках резонанса: а)  $\tilde{\Delta} = 0.01L_0$ ; б)  $\tilde{\Delta} = 0$ ; в)  $\tilde{\Delta} = -0.001L_0$ .

При отрицательных значениях  $\tilde{\Delta}$  возникают неустойчивости в спектре. Они были обсуждены выше. В областях волновых векторов, где имеют место неустойчивости, коэффициенты  $|A_{\mathbf{k}}|^2 = 1$  и соответствующие числа заполнения обращаются в бесконечность. Эти сингулярности могут быть устранены, если ввести феноменологически затухание экситонов в зоне из-за их рассеяния на других экситонах или на фононах.

В этих областях имеет место генерация новых волн и вынужденное рассеяние экситонов. Оно является беспороговым до тех пор, пока не учтено затухание энергетического спектра затравочных экситонов. Поскольку числа неравновесных экситонов в окрестностях этих областей в  $\mathbf{k}$ -пространстве становятся аномально большими, то и коэффициент поглощения света становится аномально большим. Интересно отметить, что и области, где возможно аномальное поглощение света, также смещаются на энергетической шкале в зависимости от геометрии наблюдения. Помимо множителя  $(1 - |A(x)|^2)^{-1}$ , вероятность истинного поглощения света (1) содержит второй множитель, который имеет вид лоренциана. Лоренциан также может обнаружить различную частотную зависимость при различных ориентациях векторов  $\mathbf{q}$  и  $\mathbf{k}_0$ . Однако лоренциан зависит от малой разности таких величин, как  $\hbar\omega$  и  $\hbar\omega_L$ , каждая из которых является большой по сравнению со спектром элементарных возбуждений  $E_1(\mathbf{q} - \mathbf{k}_0) = \mathcal{E}_1(\mathbf{q} - \mathbf{k}_0) + \hbar\mathbf{V}_s \cdot (\mathbf{q} - \mathbf{k}_0)$ . Поэтому анизотропия более четко проявляется через множитель  $(1 - |A_{\mathbf{q}-\mathbf{k}_0}|^2)^{-1}$ . Более того, если аргументы у соответствующих лоренцианов совпадают точно, то анизотропия, обсужденная выше, исчезает. В этом случае области, где имеет место чистое поглощение и чистое излучение, накладываются друг на друга, и их анизотропии в точности компенсируются.

Аналогичным образом, анизотропия становится незаметной, если лоренцианы имеют полуширину, большую, чем ширина  $2|\mathcal{E}_1(\mathbf{Q})|$ . Наиболее благоприятные условия наблюдения анизотропии полос поглощения и люминесценции соответствуют случаю  $\Gamma(\mathbf{Q}) < |\mathcal{E}_1(\mathbf{Q})|$  и небольшим расстройкам резонанса  $\tilde{\Delta}$ , когда  $|A_{\mathbf{q}}|^2$  близки к единице.

Формы полос поглощения и усиления света приведены на рисунке для трех значений расстройки резонанса:  $\tilde{\Delta} = 0.01L_0$ ,  $\tilde{\Delta} = 0$  и  $\tilde{\Delta} = -0.001L_0$ . Полосы усиления света расположены с длинноволновой стороны от частоты лазерного излучения, а полосы поглощения — с коротковолновой стороны. Они смещены друг по отношению к другу в зависимости от ориентации волновых векторов зондирующего излучения  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_0 + \mathbf{Q}$  и лазерного излучения  $\mathbf{k}_0$ .

Работа выполнена в рамках проекта INTAS, грант 94-324.

## Список литературы

- [1] A. Mysyrovicz, D. Hulin, A. Antonetti et al. Phys. Rev. Lett. **56**, 2748 (1986).
- [2] A. von Lehmen, D.S. Chemla, J.E. Zucker, J.P.Heritage. Opt. Lett. **11**, 609 (1986).
- [3] S. Schmitt-Rink, D. Chemla. Phys. Rev. Lett. **57**, 2752 (1986).
- [4] S. Schmitt-Rink, D.S. Chemla, H. Haug. Phys. Rev. **B37**, 941 (1988).
- [5] В.Р. Мисько, С.А. Москаленко, М.И. Шмиглюк. ФТТ **35**, 12, 3213 (1993).
- [6] С.А. Москаленко, В.Р. Мисько. УФЖ **37**, 12, 1812 (1992).
- [7] Л.В. Келдыш, А.Н. Козлов. ЖЭТФ **54**, 3, 978 (1968).
- [8] С.А. Москаленко. ФТТ **4**, 1, 276 (1962).
- [9] Н.Н. Боголюбов. Собрание научных трудов: в 3-х томах. Наук. думка, Киев (1971).