

Квантовые биения экситонов с легкими и тяжелыми дырками в спектрах отражения в квантовой яме GaAs/AlGaAs

© А.В. Михайлов¹, А.В. Трифонов^{1,2}, О.С. Султанов¹, И.Ю. Югова¹, И.В. Игнатьев¹

¹ Лаборатория оптики спина Санкт-Петербургского государственного университета, 19034 Санкт-Петербург, Россия

² Experimentelle Physik 2, Technische Universität Dortmund, D-44221 Dortmund, Germany

E-mail: mikhailovav@yandex.ru

Поступила в Редакцию 2 марта 2022 г.

В окончательной редакции 25 марта 2022 г.

Принята к публикации 25 марта 2022 г.

Экспериментально исследована динамика состояний экситонов с легкими и тяжелыми дырками в квантовой яме при когерентном возбуждении обоих экситонных резонансов в ко- и кросс-линейных и циркулярных поляризациях накачки и зондирования. В характеристиках экситонных резонансов наблюдались квантовые биения, по которым определена структура уровней системы легкого и тяжелого экситонов с помощью теоретического моделирования экспериментальных данных.

Ключевые слова: квантовая яма, легкие и тяжелые экситоны, циркулярная поляризация.

DOI: 10.21883/FTP.2022.07.52758.13

1. Введение

При возбуждении многоуровневой квантовой системы в суперпозиционное состояние возможно наблюдение квантовых биений. Для этого необходимо существование общего основного состояния. Если тяжелые и легкие экситоны в квантовой яме образуют систему с общим состоянием, их квантовые биения можно наблюдать в осцилляциях дипольного момента оптических переходов. Такие осцилляции были обнаружены экспериментально, например, в сигналах четырехволнового смешения [1,2] и дифференциального пропускания [3,4]. Однако точная структура состояний системы, состоящей из тяжелого и легкого экситонов с разными спинами, не выяснена. Это оставляет возможность альтернативного объяснения осцилляций интерференцией поляризаций, которая наблюдается во вторичном излучении двух независимых двухуровневых систем при их когерентном возбуждении. Поэтому одни авторы объясняли наблюдаемые в эксперименте осцилляции интерференцией поляризаций [1], а другие — квантовыми биениями [2]. Еще одним фактором является взаимодействие экситонов между собой. В работах [5–7] указывается, что при наличии экситон-экситонного взаимодействия эффект квантовых биений и эффект интерференции поляризаций в четырехволновом смешении неотличимы. Показательным экспериментом может быть резонансное возбуждение одного из экситонных состояний. В работе [8] при исследовании дифференциального спектра поглощения было показано, что при накачке только тяжелого экситона сдвигается также уровень легкого экситона. Авторы интерпретируют этот эффект в терминах межподзонной когерентности в валентной зоне в квантовой яме. Таким образом, вопросы о природе наблюдаемых осцилляций

интенсивности сигнала — квантовые биения или интерференция поляризаций, а также о влиянии экситон-экситонного взаимодействия на наблюдаемый эффект решены до сих пор не полностью.

В данной работе используется экспериментальная методика накачки-зондирования со спектральным разрешением [9,10] и поляризационной селекцией. Такая методика позволяет различить наблюдаемые эффекты с помощью анализа формы экситонных резонансов в рамках модели нелокального диэлектрического отклика [11]. Теоретическое моделирование возможных конфигураций экситонных состояний позволяет определить реальную энергетическую схему экситонных уровней по экспериментальным данным.

2. Экспериментальные результаты

Исследовалась высококачественная гетероструктура с квантовой ямой GaAs/AlGaAs шириной 14 нм с небольшой концентрацией алюминия (3%) в барьерных слоях. Структура была выращена методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложке GaAs. Образец был помещен в гелиевый криостат замкнутого цикла и исследовался при температуре 4 К.

Особенностью использованной в данной работе разновидности методики „накачка-зондирование“ является измерение полных спектров отражения, а не дифференциального отражения, как в более ранних исследованиях. Такая методика позволяет получать количественные данные об изменении светоэкситонного взаимодействия в абсолютных единицах. Кроме этого, измерения проводились в различных поляризациях по отношению к поляризации накачки, что позволило определить систему уровней легких и тяжелых экситонов.

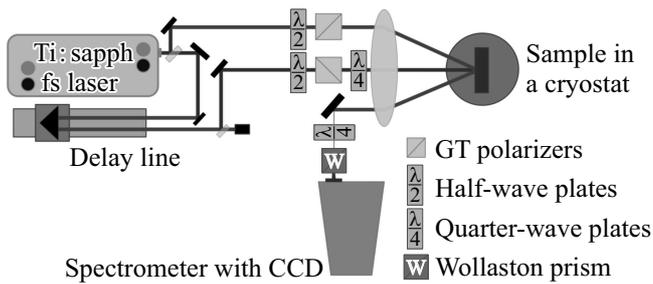


Рис. 1. Схема экспериментальной установки накачки-зондирования со спектральным разрешением и поляризационной селекцией.

На рис. 1 показана блок-схема экспериментальной установки. Для формирования накачивающего и зондирующего лучей использовалось излучение фемтосекундного титан-сапфирового лазера с широким спектром (полуширина на полувьсоте ~ 10 нм), накрывающим резонансы легкого и тяжелого экситонов. Поляризация накачивающего луча устанавливалась линейной или циркулярной. Оси поляризатора в зондирующем луче устанавливались под 45° относительно осей поляризатора в накачивающем луче. Таким образом, линейную поляризацию зондирующего луча можно было представить либо как сумму ко- и кросс-линейных поляризаций для линейной поляризации накачки, либо ко- и кросс-циркулярных поляризаций для циркулярно поляризованной накачки. Спектры отражения детектировались в различных поляризациях при помощи четвертьволновой пластинки и призмы Волластона. При измерениях в циркулярных поляризациях эта система разделяла отраженный луч на две ортогональные циркулярные поляризации, а при измерениях в линейных поляризациях — ортогональные линейные поляризации. Оба луча фокусировались на щель монохроматора и после разложения в спектр одновременно регистрировались ПЗС-матрицей на разных ее участках.

Измеренные спектры анализировались в рамках теории нелокального диэлектрического отклика, и из них извлекались такие характеристики состояний тяжелого и легкого экситонов как энергия резонанса, радиационное и нерадиационное уширения. Базовые формулы, использованные для подгонки спектров, имеют вид [11]

$$r_{QW}(\omega) = \frac{i\Gamma_R}{\omega_x - \omega - i(\Gamma_R + \Gamma_{NR})}, \quad (1)$$

$$R(\omega) = \left| \frac{r_s + r_{QW}(\omega)e^{i2\phi}}{1 + r_s r_{QW}(\omega)e^{i2\phi}} \right|. \quad (2)$$

Здесь $r_{QW}(\omega)$ описывает амплитудное отражение от экситонного резонанса, Γ_R и Γ_{NR} — скорости радиационного и нерадиационного затухания экситонной поляризации, ω_x — частота экситонного перехода, ϕ — набег фазы световой волны от поверхности образца до центра квантовой ямы, r_s — амплитудное отражение от

поверхности образца, R — интенсивность отражения от образца с учетом резонансного экситонного отражения.

Анализ спектров отражения с помощью подгонки экситонных резонансов формулами (1) и (2) позволяет определять все 4 параметра экситонного резонанса, Γ_R , Γ_{NR} , ω_x и ϕ [9,10,12–15]. В данной работе мы исследуем скорость радиационного затухания Γ_R легких и тяжелых экситонов на каждом шаге задержки между накачивающими и пробными импульсами. Зависимость Γ_R от задержки позволяет наблюдать ее динамику.

На рис. 2 показан характерный вид спектра отражения образца в отсутствие накачки. Видны резонансы экситонов с легкой и тяжелой дыркой в виде пиков отражения. Такая форма резонансов — результат специального дизайна структуры образца. На рисунке приведена также подгонка формы резонансов, демонстрирующая очень хорошее описание экспериментальных спектров формулами (1), (2). Кроме этого, на рисунке показан спектр импульсного лазера. Его центр сдвинут в область меньших энергий, чтобы уменьшить вероятность возбуждения переходов между свободными электронами и дырками, а также вероятность рождения экситонов в барьерах высокочастотным краем спектра лазера. Такие переходы приводят к заселению резервуара неизлучающих экситонов и свободных носителей [15], что уменьшает амплитуду квантовых биений.

На рис. 3 представлена динамика извлеченных из спектров отражения радиационных уширений, $\hbar\Gamma_R$, экситонов с тяжелой и легкой дыркой в ко-циркулярной поляризации. Показана только часть радиационного уширения, индуцированная оптической накачкой. В отсутствие накачки радиационные уширения равны: $\hbar\Gamma_{hh} = 30$ мкэВ для экситона с тяжелой дыркой и $\hbar\Gamma_{lh} = 15$ мкэВ для экситона с легкой дыркой. Как видно из рисунка, динамика уширения имеет достаточно сложный вид. При небольших отрицательных задержках наблюдается небольшое увеличение уширения, которое резко уменьшается в районе нулевых задержек. Эксперимент показывает, что уменьшение радиационного уширения, означающее просветление оптического перехода, сохра-

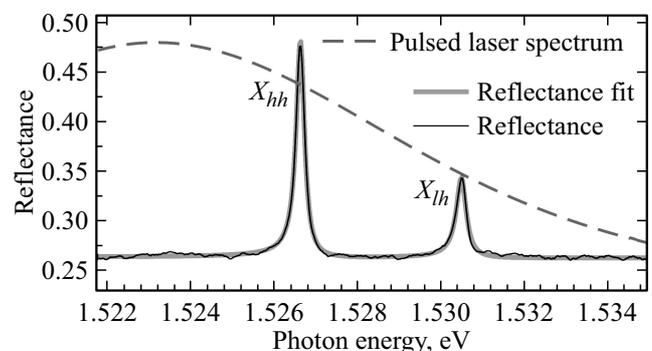


Рис. 2. Спектр отражения исследуемого образца в области резонансов тяжелого (X_{hh}) и легкого (X_{lh}) экситонов и подгонка спектра по формулам (1) и (2). Штриховой линией показан спектр излучения импульсного лазера.

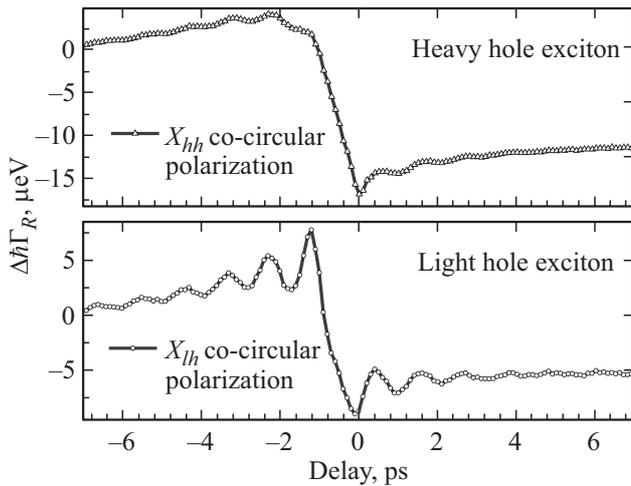


Рис. 3. Динамика фотоиндуцированного изменения радиационного уширения экситонов с тяжелой дыркой (верхняя панель) и легкой дыркой (нижняя панель) в ко-циркулярных поляризациях. Температура образца $T = 4$ К. Плотность мощности накачки $P = 30$ Вт/см².

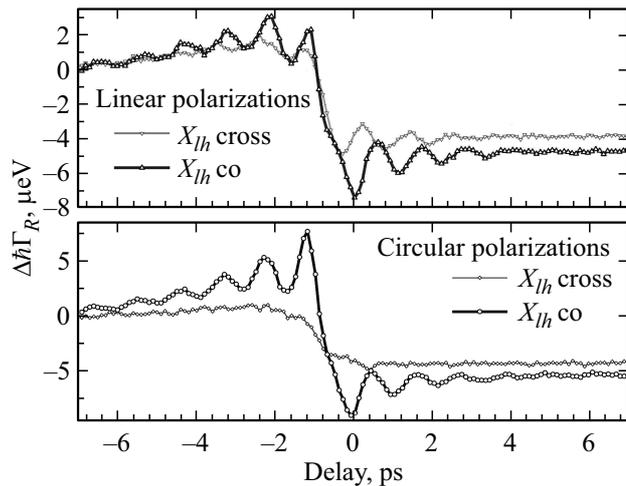


Рис. 4. Зависимость фотоиндуцированного изменения радиационного уширения легкого экситона от временной задержки для линейных (верхняя панель) и циркулярных поляризаций (нижняя панель). Показаны кривые для ко- и кросс-поляризаций детектирования. Температура образца $T = 4$ К. Плотность мощности накачки $P = 30$ Вт/см².

няется длительное время (наносекунды). Этот эффект требует отдельного исследования. На фоне указанного поведения уширения отчетливо наблюдаются осцилляции $\hbar\Gamma_R$. Мы можем интерпретировать эти осцилляции как сигнал квантовых биений. Их частота соответствует энергетическому расщеплению между состояниями экситонов с легкой и тяжелой дырками.

На рис. 4 показан результат обработки отдельных спектров отражения как функции временной задержки для радиационного уширения легкого экситона в различных поляризациях. Важно отметить, что квантовые

биения наблюдаются во всех комбинациях поляризаций накачки и зондирования, кроме кросс-циркулярной поляризации. Такой набор экспериментальных данных вместе с соответствующими данными для экситона с тяжелой дыркой позволяет отделить эффект квантовых биений от эффектов экситон-экситонного взаимодействия, наложение которых представляло проблему для предыдущих исследований по этой тематике.

3. Моделирование

Проведено теоретическое исследование динамики когерентного возбуждения экситонных состояний с легкой и тяжелой дырками. Цель моделирования заключалась в объяснении поляризационных свойств наблюдаемых осцилляций радиационного уширения экситонных резонансов. Моделирование проводилось в полуклассической модели, когда электромагнитная волна описывается уравнениями Максвелла, а возбуждаемая экситонная система — квантово-механически.

Было рассмотрено действие двух лазерных импульсов малой интенсивности и короткой длительности на экситонную систему. Под малой интенсивностью подразумевалось слабое возмущение системы, которое можно описывать в рамках последовательных приближений по теории возмущений. Короткая длительность импульсов означала то, что мы не рассматриваем релаксацию системы во время действия импульса, что соответствует экспериментальным условиям.

Действие импульса света на систему описывалось оптическими уравнениями Блоха. Были рассмотрены несколько модельных конфигураций уровней экситонной системы с различными начальными состояниями. В расчете предполагалось, что возбужденные состояния — это всегда четыре экситонных уровня с тяжелой и легкой дырками $|\text{exc}, \pm 3/2\rangle$, $|\text{exc}, \pm 1/2\rangle$. Для основных состояний были рассмотрены следующие варианты (см. схемы уровней на рис. 5):

- Схема (a), попарно смешаны следующие основные состояния: $|+3/2\rangle$ и $|-3/2\rangle$; $|+1/2\rangle$ и $|-1/2\rangle$.
- Схема (b), попарно смешаны следующие основные состояния: $|+3/2\rangle$ и $|+1/2\rangle$; $|-3/2\rangle$ и $|-1/2\rangle$.
- Схема (c), есть одно общее состояние (нет экситонов).
- Схема (d), есть четыре независимых основных состояния для электрона в валентной зоне.

Для каждой из схем решалось уравнение фон Неймана для матрицы плотности ρ в представлении взаимодействия:

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [V, \rho]. \quad (3)$$

Матрица взаимодействия со светом V состоит из недиагональных элементов, соответствующих разрешенным переходам в исследуемой системе. Если переход $j-k$ разрешен, то соответствующий матричный элемент

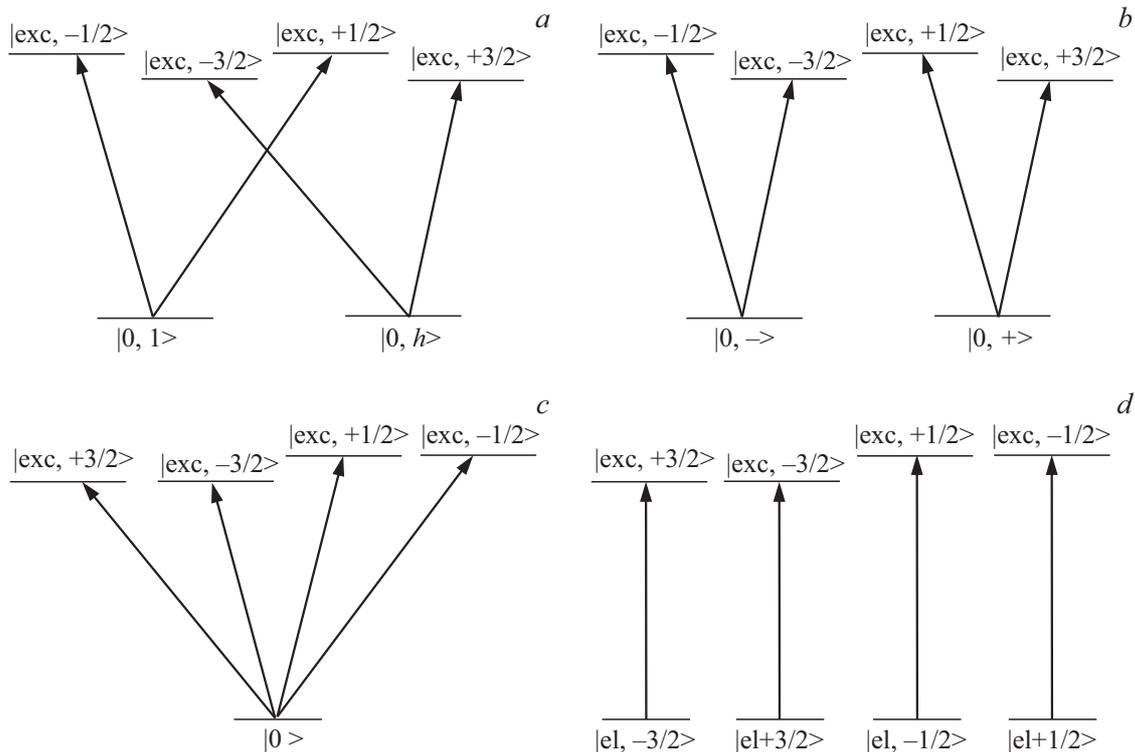


Рис. 5. Схемы уровней для теоретического моделирования (см. пояснения в тексте).

возмущения имеет вид

$$V_{jk} = -d_{jk}E_{jk}(t)e^{-i(\omega-\omega_{jk})t}, \quad (4)$$

где d_{jk} — дипольный момент, $E_{jk}(t)$ — огибающая электромагнитной волны, ω_{jk} — частота перехода и ω — несущая частота электромагнитной волны.

Оптическая поляризация экситонной системы складывается из суммы недиагональных элементов:

$$P = Tr(d\rho) = \sum_{j,k} d_{jk}\rho_{jk}. \quad (5)$$

Моделирование показало, что схемы (a) и (d) на рис. 5 не дают квантовых биений между состояниями легкого и тяжелого экситонов (нет основного общего состояния). Для схемы (b) циркулярные компоненты оптической поляризации на одном из экситонных переходов имеют вид:

$$P_+ \sim |E_{pu}^+|^2 E_{pr}^+ e^{-i\Delta_{hl}t} + c.c., \quad (6a)$$

$$P_- \sim |E_{pu}^-|^2 E_{pr}^- e^{-i\Delta_{hl}t} + c.c. \quad (6b)$$

Здесь E_{pu}^\pm и E_{pr}^\pm — циркулярные компоненты накачивающего и зондирующего световых импульсов, Δ_{hl} — расщепление между состояниями экситонов с тяжелой и легкой дырками. Квантовые биения для схемы (b) возможны во всех комбинациях поляризаций накачки и зондирования, кроме кросс-циркулярной поляризации.

Для схемы (c) компоненты поляризации имеют вид:

$$P_+ \sim |E_{pu}^+|^2 E_{pr}^+ e^{-i\Delta_{hl}t} + E_{pu}^+(E_{pu}^-)^* E_{pr}^- e^{-i\Delta_{hl}t} + c.c., \quad (7a)$$

$$P_- \sim |E_{pu}^-|^2 E_{pr}^- e^{-i\Delta_{hl}t} + E_{pu}^-(E_{pu}^+)^* E_{pr}^+ e^{-i\Delta_{hl}t} + c.c. \quad (7b)$$

Схема (c) дает биения для циркулярной и линейной ко-поляризованной накачки и зондирования, и отсутствие биений для любой кросс-поляризации.

Таким образом, согласие с экспериментом оказалось возможным только для одной из рассмотренных схем — схемы (b), где основные состояния попарно смешаны: $|+3/2\rangle$ с $|+1/2\rangle$, $|-3/2\rangle$ с $|-1/2\rangle$.

4. Заключение

Методом „накачка–зондирование“ со спектральным разрешением была исследована динамика радиационного уширения экситонов с легкой и тяжелой дырками в 14-нм квантовой яме GaAs/AlGaAs при их когерентном возбуждении. Обнаружена осциллирующая компонента радиационного уширения обоих экситонов в различных поляризационных конфигурациях эксперимента. Частота осцилляций соответствует величине расщепления экситонных состояний. Наблюдаемый эффект интерпретирован как проявление квантовых биений состояний экситонов с легкой и тяжелой дырками. Эксперимент показал, что квантовые биения проявляются в ко-циркулярной и линейных ко- и кросс-поляризациях, но не наблюдаются в кросс-циркулярной поляризации.

При сравнении результатов моделирования экспериментов „накачка–зондирование“ для различных схем уровней тяжелых и легких экситонов с учетом спина

с экспериментальными данными было обнаружено, что расчет для одной из наиболее часто используемых конфигураций с общим начальным состоянием (схема (с) на рис. 5) не объясняет эксперимент. Согласие с экспериментом оказалось возможным только при изначальном попарном смешивании состояний легких и тяжелых дырок ($|+3/2\rangle$ с $|+1/2\rangle$ и $|−3/2\rangle$ с $|−1/2\rangle$).

Финансирование работы

Авторы благодарят за финансовую поддержку РФФИ в рамках грантов № 19-52-12059, № 19-52-12032, СПбГУ в рамках гранта № 91182694, а также РЦ „Нанофотоника“ СПбГУ за предоставленный образец для исследования.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] K. Leo, Th.C. Damen, J. Shah, E.O. Gobel, K. Kohler. Appl. Phys. Lett., **57**, 19 (1990).
- [2] B.F. Feuerbacher, J. Kuhl, R. Eccleston, K. Ploog. Solid State Commun., **74**, 1279 (1990).
- [3] K. Wundke, U. Neukirch, J. Gutowski, D. Hommel. Phys. Rev. B, **53**, 10973 (1996).
- [4] G. Bartels, G.C. Cho, T. Dekorsy, H. Kurz, A. Stahl, K. Koehler. Phys. Rev. B, **55**, 16404 (1997).
- [5] T. Aoki, G. Mohs, Yu.P. Svirko, M. Kuwata-Gonokami. Phys. Rev. B, **64**, 045212 (2001).
- [6] M. Phillips, H. Wang. Solid State Commun., **111**, 317 (1999).
- [7] A.L. Smirl, M.J. Stevens, X. Chen, O. Buccafusca. Phys. Rev. B, **60**, 8267 (1999).
- [8] M.E. Donovan, A. Schülzgen, J. Lee, P.-A. Blanche, N. Peyghambarian, G. Khitrova, H.M. Gibbs, I. Romyantsev, N.H. Kwong, R. Takayama, Z.S. Yang, R. Binder. Phys. Rev. Lett., **87**, 237402 (2001).
- [9] A.V. Trifonov, E.S. Khramtsov, K.V. Kavokin, I.V. Ignatiev, A.V. Kavokin, Y.P. Efimov, S.A. Eliseev, P.Yu. Shapochkin, M. Bayer. Phys. Rev. Lett., **122**, 147401 (2019).
- [10] A.V. Trifonov, A.S. Kurdyubov, I.Ya. Gerlovin, D.S. Smirnov, K.V. Kavokin, I.A. Yugova, M. Assmann, A.V. Kavokin. Phys. Rev. B, **102**, 205303 (2020).
- [11] E.L. Ivchenko. *Optical Spectroscopy of Semiconductor Nanostructures* (Springer, Berlin 2004).
- [12] E.S. Khramtsov, P.A. Belov, P.S. Grigoryev, I.V. Ignatiev, S.Yu. Verbin, Yu.P. Efimov, S.A. Eliseev, V.A. Lovtcius, V.V. Petrov, S.L. Yakovlev. J. Appl. Phys., **119**, 184301 (2016).
- [13] P.S. Grigoryev, A.S. Kurdyubov, M.S. Kuznetsova, I.V. Ignatiev, Yu.P. Efimov, S.A. Eliseev, V.V. Petrov, V.A. Lovtcius, P.Yu. Shapochkin. Superlat. Microstruct., **97**, 452 (2016).
- [14] P.Yu. Shapochkin, S.A. Eliseev, V.A. Lovtcius, Yu.P. Efimov, P.S. Grigoryev, E.S. Khramtsov, I.V. Ignatiev. Phys. Rev. Appl., **12**, 034034 (2019).
- [15] A.S. Kurdyubov, A.V. Trifonov, I.Ya. Gerlovin, B.F. Gribakin, P.S. Grigoryev, A.V. Mikhailov, I.V. Ignatiev, Yu.P. Efimov, S.A. Eliseev, V.A. Lovtcius, M. Assmann, M. Bayer, A.V. Kavokin. Phys. Rev. B, **104**, 035414 (2021).

Редактор А.Н. Смирнов

Quantum beats of light and heavy-hole excitons in reflection spectra of GaAs/AlGaAs quantum well

A.V. Mikhailov¹, A.V. Trifonov^{1,2}, O.S. Sultanov¹, I.Yu. Yugova¹, I.V. Ignatiev¹

¹ Spin optics laboratory,
St. Petersburg State University,
199034 St. Petersburg, Russia

² Experimentelle Physik 2,
Technische Universität Dortmund,
D-44221 Dortmund, Germany

Abstract In this work we experimentally study dynamics of states of light- and heavy-hole excitons in a quantum well under coherent excitation of both excitonic resonances using co- and cross-linear and circular polarizations of pump and probe beams. In the parameters of excitonic resonances quantum beats are observed. Their polarization-dependent existence is used to determine the structure of states of the light- and heavy-hole exciton system by means of theoretical modelling of experimental data.