

Таким образом, реакция неоднородно уширенного ансамбля на когерентное импульсное возбуждение имеет следующие особенности:

1. В момент окончания второго импульса отсутствует когерентное излучение в направлениях четырехволнового смешения $2k_2 - k_1$ и k_1 .
2. Через время, равное интервалу между первым и вторым импульсами возникает когерентное излучение в направлении $2k_2 - k_1$ сигнал эха.
3. В направлении k_1 когерентное излучение отсутствует.

Измеряя зависимость амплитуды сигнала эха от временной задержки между первым и вторым импульсами, можно, как и в случае четырехволнового смешения, определить время необратимой фазовой релаксации T_p . В случае эха, однако, амплитуда сигнала определяется не только затуханием поляризации первого порядка к моменту прихода второго импульса, но и затуханием поляризации третьего порядка за время между окончанием второго импульса и формированием импульса эха, т.е.:

$$p^{(3)}(t - t_2) \propto e^{-t_{21}/T_p} \times e^{-(t-t_2)/T_p} = e^{-2t_{21}/T_p}.$$

Следовательно, при том же времени необратимой дефазировки поляризации, сигнал эха должен затухать вдвое быстрее, чем сигнал четырехволнового смешения.

3.5. Формирование сигнала эха в модели вектора Блоха [1].

Использование приближенных решений уравнений Блоха с разложением по порядкам теории возмущений дает адекватную картину формирования сигнала эха, но оно оправдано только для случая относительно слабого возбуждения, когда величины n_2 и p существенно меньше единицы. Для описания более общей ситуации необходимо воспользоваться исходной системой уравнений (6), которая, как уже отмечалось выше, в большинстве случаев аналитического решения не имеет. Несмотря на отсутствие точного решения, уравнения Блоха могут быть использованы для наглядного описания динамики населенности и поляризации. Вид этих уравнений формально соответствует уравнениям движения конца условного вектора (вектора Блоха), проекцией которого на вертикальную ось является разность населенностей, $n = n_2 - n_1$, а проекцией на горизонтальную плоскость – поляризация, p , подансамбля двухуровневых систем, имеющих одинаковую собственную частоту ω_1 .

Вектор движется в системе координат, вращающейся вокруг вертикальной оси с угловой скоростью, равной частоте колебаний электромагнитной волны. В такой системе угол между горизонтальной проекцией вектора Блоха и осью x определяет сдвиг фазы колебаний поляризации подансамбля, ϕ , относительно фазы колебаний электромагнитной волны. Под действием электромагнитного поля вектор Блоха начинает

вращаться в вертикальной плоскости. Угол поворота определяется площадью светового импульса (см. раздел 2).

Если на невозбужденный ансамбль ($n = -1, p = 0$) подействовал импульс площадью $\pi/2$, вектор Блоха поворачивается от положения «вертикально вниз» к горизонтальному положению ($n = 0, p = 1$). После прекращения действия импульса, поляризация каждого подансамбля начинает осциллировать на собственной частоте, в результате чего фазы поляризаций разбегаются, и, через время, большее T_2^* , вектора поляризации подансамблей образуют сплошную розетку в горизонтальной плоскости. Суммарная поляризация ансамбля становится при этом равной нулю.

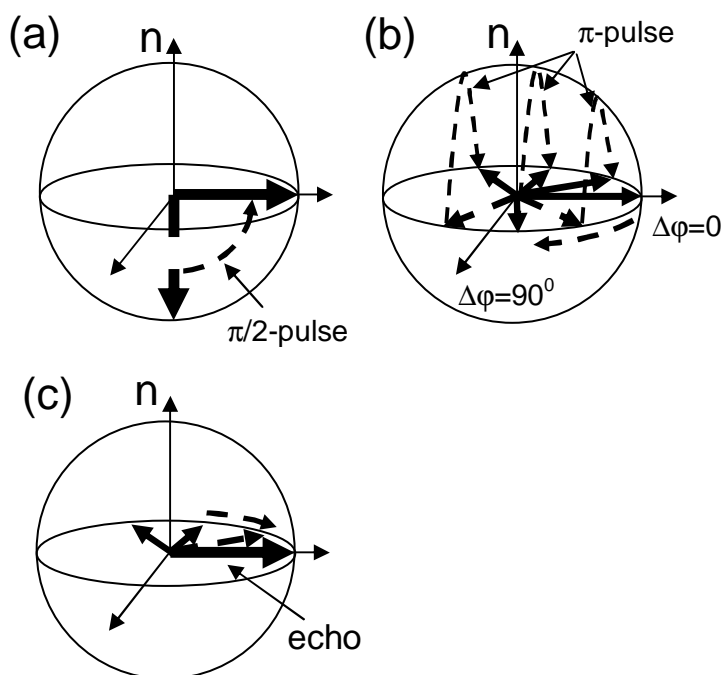


Рис. 7. Диаграммы формирования сигнала эха в модели вектора Блоха. (а) – в момент времени $t = 0$ световой $\pi/2$ -импульс поворачивает вектор Блоха до горизонтального направления; (б) - в момент времени $t = t_{21}$ π -импульс переворачивает розетку векторов поляризации на 180° . (с) – продолжая движение по часовой стрелке, вектора поляризации в момент $t = 2t_{21}$ собираются вместе и выдают импульс эха.

Через время t_{12} на ансамбль действует второй импульс, площадью, равной π , который переворачивает розетку векторов поляризации на 180° вокруг горизонтальной оси, что фактически приводит к обращению движения фазы векторов поляризации подансамблей. После этого, разность фаз начинает уменьшаться во времени с той же скоростью, с которой она накапливалась. В результате, через время, равное t_{12} , все вектора совмещаются, т.е. поляризации подансамблей снова оказываются сфазированными, и ансамбль испускает импульс когерентного излучения – импульс фотонного эха.

Для импульсов, площадь которых отличается от $\pi/2$ и π , описание формирования сигнала эха с использованием модели вектора Блоха становится существенно менее наглядным, что является одним из недостатков этой модели. Вторым недостатком является то, что она не содержит информации о направленности когерентного излучения при регистрации эха. С точки зрения этой модели, оба направления четырехволнового смещения ($2k_2 - k_1$ и k_1) являются равноправными, тогда как в действительности сигнал эха может наблюдаться только в первом из этих направлений.

4. Динамика когерентных процессов в полупроводниковых гетероструктурах.

4.1. Коллективные возбуждения полупроводника [5].

а. Элементарные сведения об энергетической структуре полупроводника.

Прежде чем приступить к обсуждению процессов когерентного взаимодействия полупроводниковых кристаллов со светом, необходимо понять, что представляют собой возбужденные состояния полупроводника и в какой мере к ним применимы использованные в предыдущих разделах представления об ансамбле невзаимодействующих двухуровневых систем.

Формирование зонной структуры кристалла, в том числе и полупроводника, обусловлено взаимодействием между атомами, тесно упакованными в кристаллическую решетку. Этот процесс можно представить, рассмотрев для начала взаимодействие двух одинаковых атомов, причем для простоты можно учитывать только два энергетических состояния каждого атома: основное и возбужденное. При отсутствии взаимодействия, первое возбужденное состояние такой пары двукратно вырождено. Межатомное взаимодействие снимает вырождение, расщепляя возбужденное состояние на два уровня, причем каждый из уровней соответствует состоянию, в котором возбуждение одновременно присутствует на обоих атомах. Аналогичным образом, возбужденное состояние системы из N взаимодействующих атомов расщепляется на N уровней, и каждый уровень соответствует возбуждению распределенному по всем атомам. При очень большом числе атомов уровни сливаются в зону, образуя то, что называется зоной проводимости полупроводника.

Электрон в зоне проводимости не принадлежит конкретному атому – он может свободно распространяться по всему кристаллу. При не слишком больших кинетических энергиях движение электрона в периодическом потенциале, создаваемом атомами кристаллической структуры, фактически воспроизводит движение свободной частицы с некоторой эффективной массой m^* . Параметрами движения такой частицы являются кинетическая энергия, E_k , и импульс, k , связанные соотношением: $E_k = \hbar^2 k^2 / 2m^*$. Таким образом, зона проводимости в координатах $E_k = f(k)$ (кривая дисперсии) в своей нижней части может быть описана параболой.

Поглощение фотона, которое изолированный атом просто переводит в возбужденное состояние, в кристалле сопровождается переводом электрона в зону проводимости, т.е. ионизацией атома. Образовавшийся на месте ионизированного атома положительный заряд (дырка) может, благодаря трансляционной симметрии кристалла, перемещаться с одного узла на другой, ведя себя как положительно заряженная свободная частица. Тем самым, верхняя заполненная зона кристалла (валентная зона) представляет собой свободную зону для дырок. Кинетическая энергия дырки отсчитывается в направлении, противоположном энергии электрона. Таким образом, энергия поглощенного фотона расходуется на перенос электрона в зону проводимости и на придание кинетической энергии образовавшимся при этом электрону и дырке.

Электрон дырочные пары не являются единственными возможными возбуждениями в полупроводнике. Кулоновское притяжение электрона и дырки приводит к образованию связанного состояния – экситона. Поскольку эффективная масса дырки, как правило, значительно больше эффективной массы электрона, то экситон можно, в первом приближении, рассматривать как водородоподобный атом, в котором дырка играет роль ядра. При этом экситон может свободно перемещаться по кристаллу, и его движение характеризуется волновым вектором, равным сумме волновых векторов электрона и дырки. Так же как для электрона и дырки, кинетическая энергия экситона в объемном кристалле характеризуется сплошным спектром, простирающимся от нуля до значений, соответствующих волновому вектору, k_B , лежащему на границе зоны Бриллюэна.

В квантово-размерных гетероструктурах: квантовых ямах, сверхрешетках, квантовых точках, движение носителей ограничено в одном или нескольких направлениях. Например, в квантовой яме движение электронов и дырок вдоль оси роста структуры (оси “z”) ограничивается потенциалами, создаваемыми барьерными слоями, имеющими большую ширину запрещенной зоны, чем материал квантовой ямы. Наличие барьеров накладывает жесткие ограничения на значения волнового вектора стационарных состояний. Стационарными оказываются только те состояния, для которых волновая функция носителя в квантовой яме содержит целое число полуволн. Это условие приводит к выделению из сплошного спектра возможных состояний только состояния с определенной энергией, т.е. происходит квантование уровней энергии. Для движения в плоскости квантовой ямы спектр кинетических энергий остается по-прежнему сплошным. В квантовых точках, где движение носителей ограничено по всем трем координатам, спектр состояний оказывается полностью дискретным.

б. Динамика возбуждений.

Важнейшим процессом, определяющим динамику возбуждений в полупроводнике, является излучательная рекомбинация, т.е. переход в основное состояние с испусканием светового кванта. В случае изолированного

атома, излучательное (радиационное) время жизни определяется дипольным моментом перехода и для разрешенных переходов составляет $10^{-7} - 10^{-8}$ s. Поскольку, как отмечалось выше, зонные состояния полупроводника формируются из состояний образующих его атомов, то дипольный момент межзонного перехода должен иметь величину того же порядка, что и в атомах. На рекомбинацию электрон дырочной пары накладывается, однако, дополнительное условие, связанное с тем, что носители являются свободными частицами. В этом случае, помимо сохранения энергии, в процессе испускания (поглощения) фотона должен сохраняться еще и суммарный импульс системы, т.е.: $k_e + k_h = k_{\text{phot}}$, где k_e , k_h и k_{phot} – импульсы электрона, дырки и фотона, соответственно.

Поскольку импульс фотона крайне мал, то последнее условие можно приближенно представить в виде $k_e \approx -k_h$. Число состояний в пространстве импульсов для электрона и дырки одинаково, поэтому такое условие вполне может быть выполнено - для любого носителя одного знака всегда найдется носитель другого знака с таким же импульсом. В результате, время излучательной рекомбинации электрон дырочной пары в прямозонных полупроводниках также имеет порядок $10^{-8} - 10^{-7}$ s.

Экситонные состояния формируются из состояний электрон дырочных пар и должны, казалось бы, иметь практически такую же вероятность излучательной рекомбинации. В действительности, однако, здесь решающую роль начинает играть закон сохранения импульса. Поскольку экситон могут образовать только электрон и дырка, движущиеся в одном направлении, то импульс экситона, складывающийся из импульсов электрона и дырки, может равняться импульсу фотона только для значений импульсов носителей вблизи нуля. Таким образом, в объемном кристалле преобладающая часть экситонной ветви не взаимодействует со светом, и, в соответствии с правилом сумм сил осцилляторов, весь дипольный момент электрон дырочных пар концентрируется в крайне узкой области вблизи значения импульса фотона. В результате, взаимодействие со светом в этой области оказывается столь большим, что образуется связанное экситон-фотонное состояние, и внутри кристалла электромагнитная волна может распространяться только в таком связанном состоянии, получившем название поляритона. Отсюда следует, что в объемном кристалле излучательная рекомбинация экситона принципиально невозможна: экситоны с малыми импульсами не в состоянии рекомбинировать с испусканием электромагнитной волны, поскольку она не может самостоятельно распространяться по кристаллу, а экситоны с большими импульсами со светом не взаимодействуют.

В квантовых ямах возникает возможность радиационного распада экситона с испусканием кванта в прозрачный на экситонных частотах барьер. При этом, поскольку компонента импульса, перпендикулярная гетерограницам, не сохраняется, со светом могут взаимодействовать все экситонные состояния, волновой вектор которых в плоскости квантовой ямы лежит в диапазоне $(0 - k_{\text{phot}})$. Доля таких состояний от всей экситонной ветви ориентировочно составляет $\alpha \approx (k_{\text{phot}}/ k_B)^2 = (a/\lambda)^2$, где λ - длина волны света в среде, a –

постоянная решетки кристалла. Примерно таким же должно быть соотношение вероятностей радиационной рекомбинации электрон дырочных пар и экситона в квантовой яме, т.е. $1/\tau_{eh} \approx \alpha/\tau_{ex}$. Для GaAs $\lambda \approx 250$ nm, а постоянная решетки $a \approx 0.6$ nm, т.е. коэффициент α имеет порядок 10^{-5} , что соответствует $1/\tau_{ex} \approx 10^{12} \text{ s}^{-1}$. Результаты экспериментов на квантовых ямах высокого качества действительно дают близкие значения. Столь короткие времена радиационного перехода никогда не реализуются в атомах. Такое радикальное различие в вероятностях экситонных переходов и переходов в классических атомных системах дает многим авторам основание использовать эпитеты «гигантский дипольный момент» или «гигантская сила осциллятора» при описании динамики излучательной рекомбинации экситонов.

Из приведенного рассмотрения следует, что скорость радиационного распада экситона в квантовой яме существенно зависит от качества гетероструктуры. Действительно, если экситон локализован на неоднородностях гетерограниц или за счет рассеяния на дефектах структуры, то закон сохранения остается справедливым только для волновых векторов k_1 , меньших обратного радиуса локализации. Если радиус локализации становится меньшим длины волны света, то область волновых векторов, разрешенная для взаимодействия с фотонами, расширяется, что приводит к уменьшению вероятности перехода, приходящейся на одно излучательное состояние. Эксперименты показывают, что для экситонов, локализованных на точечной примеси, время радиационной рекомбинации имеет порядок 10^{-9} s.

Помимо радиационной рекомбинации, существенным каналом энергетической релаксации возбуждений является взаимодействие с колебаниями решетки – фононами. В частности, созданная светом пара носителей может потерять (или приобрести) часть кинетической энергии, испустив (или поглотив) фонон, и выйти тем самым из резонанса с возбуждением. Скорость такого процесса внутризонной релаксации в полупроводниках составляет $10^{10} - 10^{12} \text{ s}^{-1}$, т.е. заметно превышает скорость излучательной рекомбинации электрон дырочных пар. Фононы также участвуют и в другом процессе энергетической релаксации электрон дырочных пар и экситонов – передаче энергии возбуждения ловушкам (примесям или дефектам). В случае, когда уровни энергии ловушек расположены ниже энергии первоначального возбуждения, избыток энергии передается фононам, что делает процесс передачи энергии необратимым.

Основными источниками фазовой релаксации экситонов являются процессы упругого экситон-экситонного рассеяния и рассеяния на свободных носителях. Процессы экситон-экситонного рассеяния становятся эффективными при больших плотностях оптического возбуждения, когда концентрация экситонов в квантовой яме достигает приблизительно 10^{10} cm^{-2} и выше. Эффективность рассеяния на свободных электронах примерно в десять раз больше – оно становится заметным при наличии

10^9 cm^{-2} электронов в слое квантовой ямы. Причинами появления избыточных электронов в полупроводнике могут быть как преднамеренное легирование донорными примесями, так и оптическое возбуждение.

4.2. Когерентные процессы в полупроводниках [6].

Развитые в разделе 3 представления, используемые для описания когерентного взаимодействия света с ансамблем двух-уровневых систем, вполне применимы для разреженных атомных паров или для диэлектрических кристаллов, активированных ионами с незаполненными d или f оболочками, экранированными внешними электронами от кристаллического поля. Возможность перенесения этих представлений на когерентные процессы в полупроводниковых кристаллах и гетероструктурах не очевидна, поскольку коллективные возбуждения полупроводника: электрон дырочные пары и экситоны, не очень похожи на невзаимодействующие двухуровневые системы. Тем не менее, как показали многочисленные эксперименты, основные закономерности, характеризующие когерентный отклик полупроводниковых структур на резонансное оптическое возбуждение, довольно хорошо согласуются с описанными в предыдущем разделе. В то же время, процессы когерентного взаимодействия полупроводниковых систем со светом отличаются существенными особенностями, требующими внесения определенных дополнений в рассмотренную выше модель. Ниже будут рассмотрены некоторые из этих особенностей.

а.Резонансное возбуждение электрон дырочных пар.

Ширина спектра межзонного поглощения полупроводника составляет единицы eV , т.е. близка к ширине спектра теплового излучения черного тела. Известно, что спектр нагретого тела является однородным, т.е. его ширина соответствует времени фазовой релаксации излучателей порядка 10^{-15} s, что близко к периоду колебаний световой волны. При такой быстрой релаксации наблюдение когерентных эффектов принципиально невозможно.

В отличие от черного тела, оптические переходы в полупроводнике, сопровождаемые рождением или рекомбинацией электрон дырочных пар, удовлетворяют закону сохранения импульса, поэтому переход на каждой частоте связан с вполне конкретной парой, радиационное время жизни которой имеет порядок 10^{-8} s. Уширение, обусловленное электрон-фононной релаксацией носителей, в десятки раз больше радиационного, но также много меньше полной ширины спектра. Фактически это означает, что межзонный спектр полупроводника можно рассматривать как спектр неоднородно уширенного ансамбля электрон дырочных пар, на котором возможна, в принципе, реализация эффекта фотонного эха.

При столь большой величине неоднородного уширения, обратимая фазовая релаксация (время T_2^*) должна, казалось бы, быть исключительно быстрой. В действительности, однако, световым импульсом будут возбуждаться только состояния, попадающие в резонанс со светом, поэтому разброс частот поляризаций будет в данном случае определяться спектральной шириной импульса, $\Delta\omega_i$, связанной с длительностью импульса соотношением: $\Delta\omega_i \approx 1/\Delta t_i$. Таким образом, величина T_2^* окажется примерно равной длительности импульса. Длительность импульсов современных перестраиваемых

лазеров составляет 10^{-13} - 10^{-12} s, и за такое же время будет затухать созданная лазерными импульсами поляризация неоднородно уширенного ансамбля.

С практической точки зрения это означает, что эксперименты по фотонному эхо могут дать определенную информацию о времени *необратимой* фазовой релаксации, T_2 , электрон дырочных пар, если это время превышает длительность световых импульсов. В литературе существуют данные об экспериментах такого рода на объемном кристалле GaAs. Исследование зависимости амплитуды сигнала эха, полученного при межзонном возбуждении, от задержки между лазерными импульсами позволило определить время необратимой фазовой релаксации электрон дырочных пар, составившее примерно 10^{-10} s. Это время оказалось близким к времени разгорания экситонной люминесценции, регистрируемой с соответствующим стоковым смещением. Поскольку разгорание люминесценции определялось преимущественно процессами энергетической релаксации носителей, то полученное совпадение указывало на энергетическую релаксацию как основной источник разрушения поляризации электрон дырочных пар. Это означает, что в данном случае реализовалась ситуация, когда $T_p \approx T_1$.

в. Четырехволновое смешение на экситонной системе.

Экситон-экситонное взаимодействие.

Экситонные состояния кристалла во многом похожи на состояния изолированных атомов. Экситонные переходы характеризуются исключительно узким спектром - в особо качественных структурах экситонные линии имеют радиационную ширину, при том что в атомных системах радиационное уширение можно наблюдать только в крайне разреженных специально охлажденных парах. В то же время, в отличие от атома, экситон не локализован в конкретной точке - в идеальной структуре, его волновая функция распространяется на весь кристалл. Таким образом, даже при малой концентрации экситонов, их волновые функции в кристалле перекрываются, что делает возможным взаимодействие между ними.

Локализация экситонов в ограниченной области кристалла увеличивает перекрытие и усиливает межэкситонное взаимодействие. Проявлением такого взаимодействия является, в частности, образование экситонной молекулы - биэкситона, суммарная энергия которого меньше удвоенной экситонной энергии на величину энергии связи.

Экситон-экситонное взаимодействие не может быть рассчитано из первых принципов, что не позволяет построить строгую теорию когерентных эффектов на экситонных состояниях. Это взаимодействие феноменологически рассматривается как некоторое локальное поле, действующее на экситон со стороны других экситонов. Амплитуда поля пропорциональна экситонной поляризации p_{12} , и, так же как поляризация, поле осциллирует на частоте экситонного перехода. Вследствие слабости экситон-экситонного взаимодействия это поле оказывается существенно меньшим, чем поле световой волны, и в системе уравнений Блоха оно присутствует только в

уравнении для поправки третьего порядка к ρ_{12} , которое в этом случае приобретает вид:

$$i\hbar \frac{d\rho_{12}^{(3)}}{dt} = n^{(2)}(2V_{12} + V_{ex}\rho_{12}^{(1)}),$$

где V_{ex} – эмпирическая константа взаимодействия.

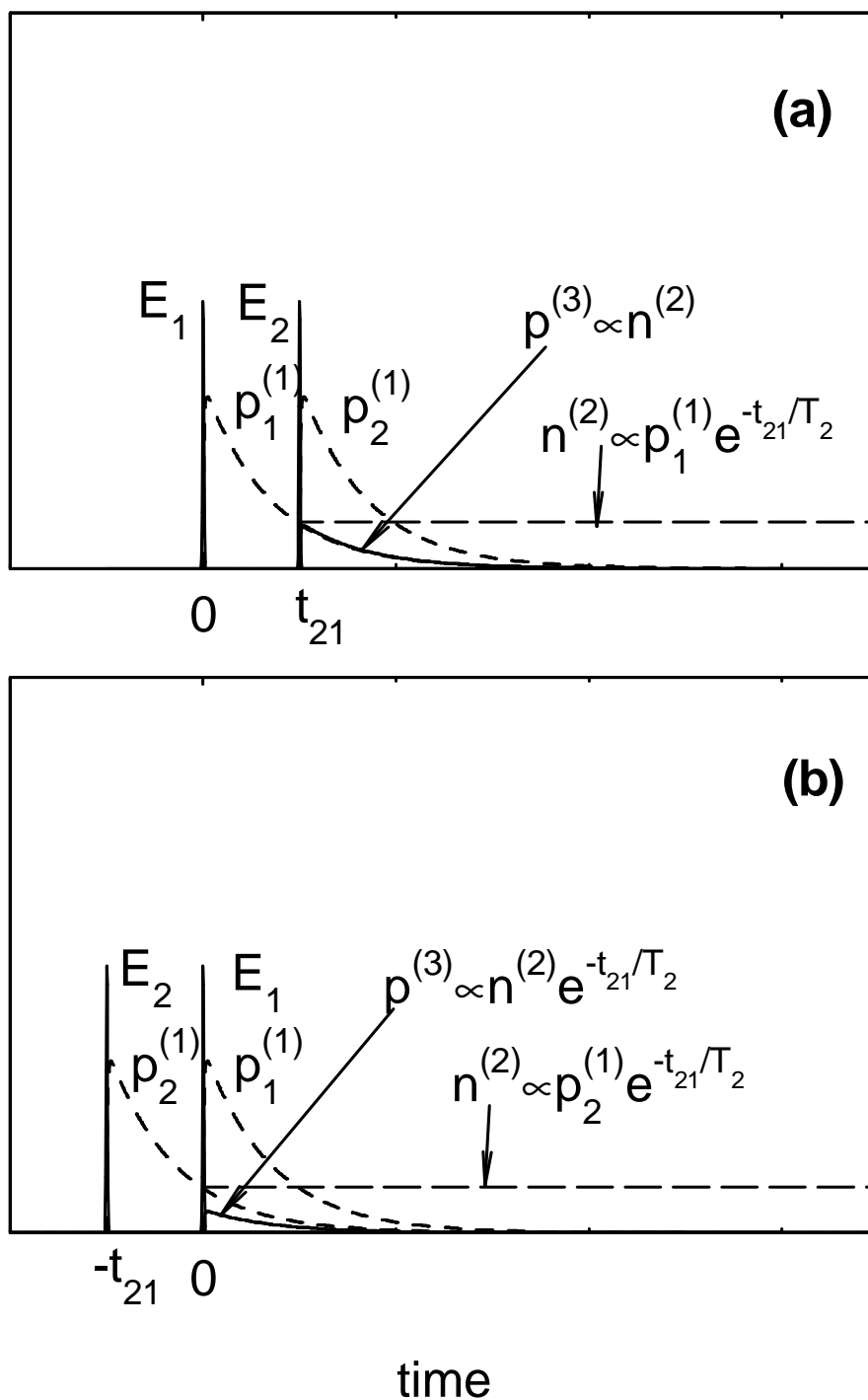


Рис.8. Формирование сигнала четырехволнового смешения ($p^{(3)}$) в реальном времени при положительных (а) и отрицательных (б) задержках между импульсами «1» и «2».

Наличие такого взаимодействия приводит к появлению неожиданного эффекта в экспериментах по четырехволновому смешению на экситонных системах. В соответствии с изложенным в разделе 3.3, эксперимент заключается в возбуждении ансамбля двухуровневых систем (в данном случае – экситонов в слое полупроводника) двумя когерентными лазерными пучками, характеризуемыми проекциями волнового вектора на плоскость слоя: k_1 и k_2 , и в наблюдении импульса когерентного излучения в направлении $k = 2k_2 - k_1$. Измеряется зависимость интенсивности этого излучения как функция временной задержки между лазерными импульсами «1» и «2». Сигнал имеет максимальную величину при совпадении импульсов во времени (нулевая задержка) и экспоненциально спадает при увеличении задержки. Поскольку излучение в указанном направлении порождается поляризацией третьего порядка, созданной при взаимодействии второго лазерного пучка с решеткой населенностей, то при отрицательных задержках (импульс «2» приходит раньше импульса «1») это излучение должно отсутствовать. Действительно, в момент прихода импульса «2» решетка населенностей еще не создалась, а излучение, порожденное дифракцией импульса «1» на решетке населенностей, распространяется в других направлениях.

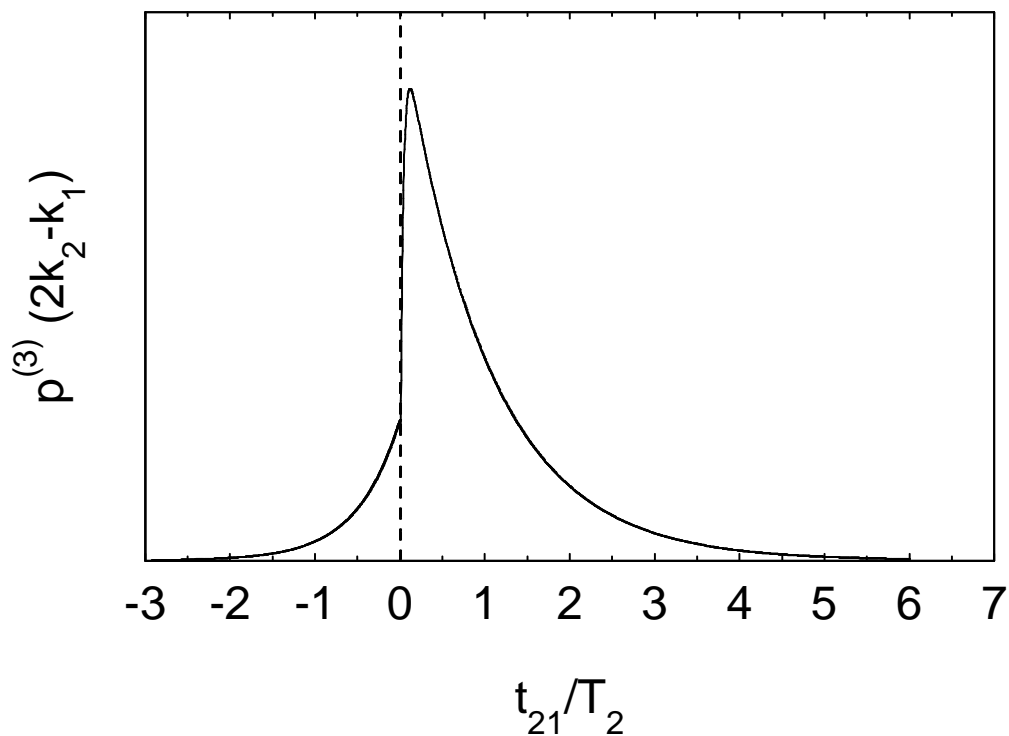


Рис.9. Зависимость интегрального сигнала четырехволнового смешения на экситонной системе от задержки между импульсами «1» и «2».

Как это ни удивительно, но эксперименты с экситонами в GaAs квантовых ямах показали, что этот вывод не верен – в области отрицательных задержек наблюдается вполне отчетливый сигнал, спадающий по мере увеличения абсолютной величины задержки. В результате создается

впечатление, что импульс «2», придя раньше импульса «1», «знает», что здесь будет решетка населенностей, и порождает соответствующую поляризацию третьего порядка еще до появления решетки. Исходя из этого, эффект получил условное название «эффект нарушения причинности».

В действительности, причиной появления сигнала при отрицательных временных задержках является именно экситон-экситонное взаимодействие. Как следует из приведенного выше уравнения, при наличии взаимодействия, поляризация третьего порядка может порождаться не только полем световой волны, но и локальным полем, создаваемым экситонной поляризацией. При отрицательной временной задержке, когда к моменту прихода импульса «1» поле световой волны импульса «2» уже отсутствует, тем не менее, сохраняется созданное импульсом «2» локальное поле. Это поле, взаимодействуя с созданной двумя импульсами решеткой населенностей, становится источником поляризации третьего порядка, порождающей когерентное излучение в направлении $k = 2k_2 - k_1$. В реальном времени излучение возникнет только после прихода импульса «1» (см. Рис.8b), поэтому нарушение причинности является исключительно иллюзией, связанной с особенностью двухимпульсного эксперимента.

Поскольку, как отмечалось выше, локальное экситонное поле значительно уступает полю световой волны, то при переходе к отрицательным задержкам амплитуда сигнала четырехволнового смешения резко падает (Рис.9). Измерив разницу амплитуд в областях положительных и отрицательных задержек, можно, в принципе, оценить эффективность экситон-экситонного взаимодействия в исследуемой системе. При этом надо иметь в виду, что сигнал в отрицательной области спадает вдвое быстрее, чем в положительной, т.к. его величина определяется не только амплитудой решетки населенности, но и амплитудой поляризации, созданной импульсом «2».

с. Экситон как трехуровневая система. Аккумулированное фотонное эхо.

Поскольку экситон сформирован двумя частицами, то он обладает угловым моментом (спином), равным алгебраической сумме угловых моментов электрона и дырки (собственный орбитальный момент нижайшего экситонного состояния равен нулю). В кристаллах, типа GaAs, спин электрона равен $1/2$, а угловой момент тяжелой дырки – $3/2$. В итоге образуются два экситонных состояния, характеризующиеся значениями полного момента $J = 1$ и $J = 2$. Переход в состояние с $J = 1$ разрешен – это излучающее и поглощающее («светлое») экситонное состояние. Состояние с полным моментом, равным 2, не взаимодействует со светом («темное» состояние), т.е. рекомбинация экситона с испусканием фотона из этого состояния невозможна, и время жизни «темного» состояния может оказаться очень большим.

Наличие третьего уровня, пусть даже и не взаимодействующего со светом, может внести определенные коррективы в формирование сигнала четырехволнового смешения в трехимпульсном режиме. После того, как первые два импульса сформируют решетку населенностей в системе «светлых»

экситонов, оказывается возможным частичное заселение состояния $J = 2$ за счет безызлучательной релаксации из состояния с $J = 1$. Таким образом, решетка населенностей окажется спроецированной на систему «темных» состояний, и эта проекция будет существовать в течение длительного времени после рекомбинации «светлых» экситонов. Поскольку сумма населенностей всех уровней системы должна быть равна единице, то наличие пространственной модуляции населенности темного уровня, n_3 , в обязательном порядке приведет и к модуляции населенности основного состояния, n_1 . В результате, окажется промодулированной разность населенностей, $n = n_2 - n_1$, ответственная за формирование поляризации третьего порядка на светлом экситонном переходе. Наличие такой модуляции приведет к появлению когерентного излучения в направлениях четырехволнового смешения при подаче на экситонный ансамбль третьего светового импульса. В этом случае зависимость амплитуды сигнала от задержки между вторым и третьим импульсами будет определяться временем жизни темного состояния, превышающим время радиационной рекомбинации светлого состояния на несколько десятичных порядков.

Если при этом возбуждение осуществляется периодически следующими световыми импульсами (что обычно и бывает на практике), причем период следования существенно уступает времени жизни «темного» состояния, то решетка населенностей будет накапливаться от импульса к импульсу, что приведет к значительному усилению регистрируемого сигнала. Такой режим генерации эха с использованием долгоживущих состояний получил название «аккумулированного фотонного эха».

d. Инвертирование экситонного состояния π -импульсом.

Как отмечалось в разделе 2, действие светового импульса, площадь которого, $S = 2d_{12}E_0\Delta t/h = \pi$ (т.е. π -импульса), инвертирует двухуровневую систему. Инвертированное состояние не обладает дипольным моментом, и является поэтому относительно стабильным, поскольку не может излучить когерентную волну. Таким образом, оптический π -импульс может быть использован для триггерного переключения двухуровневой системы, что может быть положено в основу организации чисто оптических вычислительных процедур.

С этой точки зрения, существенным является вопрос об оптимизации параметров переключения. Площадь импульса можно сохранить, меняя любую пару из трех параметров: дипольный момент перехода, d_{12} , напряженность электрического поля световой волны, E_0 , и длительность импульса, Δt . Как правило, желательно использовать для создания инверсии импульс с наименьшей энергией. Исходя из этого, выгодно уменьшать напряженность поля световой волны, поскольку энергия светового импульса, I , пропорциональна квадрату напряженности и линейно зависит от длительности. Таким образом, увеличивая длительность импульса, можно уменьшать его энергию, сохраняя при этом площадь. При этом, однако, возможность увеличения

длительности не беспредельна – она лимитируется временем фазовой релаксации системы.

Альтернативный способ уменьшения энергии π -импульса заключается в использовании двухуровневых систем с большим дипольным моментом перехода d_{12} . Этому требованию в наибольшей степени удовлетворяют экситоны в полупроводниковых квантовых ямах. Как отмечалось в разделе 4.1.b, в высококачественных гетероструктурах вероятность излучательной рекомбинации экситонов, жестко связанная с дипольным моментом, может на три – четыре десятичных порядка превосходить вероятность разрешенного оптического перехода в атомах.

В то же время, при оценке возможности создания инверсии экситонных состояний следует иметь в виду, что в случае идеальной бесконечной среды каждое экситонное состояние является состоянием всего кристалла. Энергетическая структура кристалла содержит в таком случае систему эквидистантных экситонных уровней, аналогичных уровням энергии гармонического осциллятора. В эквидистантной системе невозможно резонансно инвертировать одно состояние, не инвертировав все остальные.

Структура реальных полупроводников отличается от идеальной, и эта неидеальность структуры сопровождается локализацией экситонов в ограниченной области полупроводника. Одним из следствий локализации является нарушение эквидистантности экситонных уровней, обусловленное экситон-экситонным взаимодействием (см. раздел 4.2.b). Это делает возможным создать резонанс светового поля только с нижайшим экситонным переходом в каждой локальной области и реализовать инверсию на этом переходе. Оптимальной является ситуация, когда размер области локализации достаточно велик, чтобы гарантировать большую величину дипольного момента перехода, и в то же время достаточно мал, чтобы нарушение эквидистантности экситонных уровней превышало спектральную ширину перехода.

4.3. Квантовые биения экситонных состояний [6,7].

Описание когерентных эффектов, рассматривавшихся в предыдущих главах, базировалось на представлении о том, что электромагнитная волна резонансно взаимодействует только с одним переходом в атоме или в ансамбле. В то же время, если система содержит два близко расположенных оптически активных уровня, то короткий световой импульс, спектральная ширина которого превышает расстояние между уровнями, будет одновременно взаимодействовать с переходами на каждый из уровней. Результатом такого взаимодействия станет образование когерентной суперпозиции трех состояний: основного и двух возбужденных. В этом случае поляризация или дипольный момент системы будет формироваться суммой вкладов от переходов из основного состояния в каждое из возбужденных. Пока действует световое поле, поляризация осциллирует на частоте электромагнитной волны, однако после прекращения возбуждения каждый из вкладов начинает осциллировать на

собственной частоте перехода. Различие частот осцилляций приведет к биению во времени амплитуды суммарной поляризации на разностной частоте. Этот чисто квантовый интерференционный эффект, возникающий в каждой индивидуальной трехуровневой системе и не имеющий классического аналога, получил название эффекта квантовых биений.

Теоретические и экспериментальные исследования квантовых биений, были начаты еще в начале 60-х годов. Первые эксперименты, выполненные на атомных парах, представляли, в основном, академический интерес и не получили широкого распространения. В последние два десятилетия интерес к эффекту квантовых биений резко возрос в связи с наблюдением биений в квантово-размерных полупроводниковых наноструктурах. Многочисленные эксперименты показали, что эффект квантовых биений представляет собой мощный инструмент спектрального анализа, позволяющий определять тонкую структуру энергетических состояний, скрытую в неоднородно уширенном контуре оптического перехода. При этом анализ затухания биений позволяет исследовать процессы фазовой релаксации, приводящие к распаду когерентности суперпозиционного состояния.

а. Квантовые биения в сигнале четырехволнового смещения.

Квантовые биения, обусловленные интерференцией расщепленных состояний, наблюдаются и в кинетике люминесценции после возбуждения коротким импульсом, и в сигнале дифференциального пропускания, но наиболее эффективные результаты были получены именно при наблюдении когерентных процессов типа четырехволнового смещения или фотонного эха.

В двухимпульсных экспериментах по наблюдению эффекта четырехволнового смещения на плоском ансамбле трехуровневых систем, первый импульс создает в ансамбле волну поляризации, распространяющуюся в плоскости с волновым вектором k_1 , равным проекции волнового вектора света на эту плоскость. Отличие от ансамбля двухуровневых систем заключается в том, что в данном случае амплитуда поляризации меняется во времени с частотой, определяемой разностью энергий возбужденных состояний каждой системы ансамбля. Поскольку эта частота много меньше частоты оптических колебаний, то поляризация во всех точках ансамбля синхронно меняется во времени от максимума к минимуму и обратно. В результате, амплитуда решетки населенностей, созданной на этой поляризации вторым световым импульсом, будет испытывать осциллирующую зависимость от временного интервала между первым и вторым импульсами. Точно такой же будет соответствующая зависимость амплитуды дифрагированной на этой решетке поляризации третьего порядка, порождающей излучение четырехволнового смещения. Осцилляции, естественно, появятся и в сигнале четырехволнового смещения, пропорциональном квадрату амплитуды поляризации. Измерив зависимость сигнала от задержки между первым и вторым импульсами, можно с хорошей точностью определить частоту биений и вычислить тем самым величину расщепления между интерферирующими состояниями.

Столь же информативным, но технически более сложным, способом наблюдения квантовых биений является регистрация кинетики сигнала четырехволнового смешения в реальном времени. Форма сигнала будет непосредственно отражать связанные с интерференцией расщепленных состояний осцилляции поляризации третьего порядка, созданной вторым световым импульсом.

В следующих разделах будут приведены примеры и тех и других типов экспериментов по наблюдению квантовых биений экситонных состояний в полупроводниковых квантовых ямах.

в. Биения состояний легкой и тяжелой дырок.

Как отмечалось выше (см. раздел 4.2), полный угловой момент дырки в полупроводнике равен $3/2$. В квантово-размерных структурах снимается вырождение дырочных состояний с разной проекцией момента на ось квантования. Состояния с проекцией $\pm 3/2$ (состояния тяжелой дырки или HH-состояния) оказываются ниже по энергии, чем состояния с проекцией $\pm 1/2$ (состояния легкой дырки или LH-состояния). Это приводит к энергетическому расщеплению соответствующих экситонных состояний на величину, порядка единиц meV . Пример такого расщепления для квантовой ямы толщиной 17 nm продемонстрирован на рисунке 10.

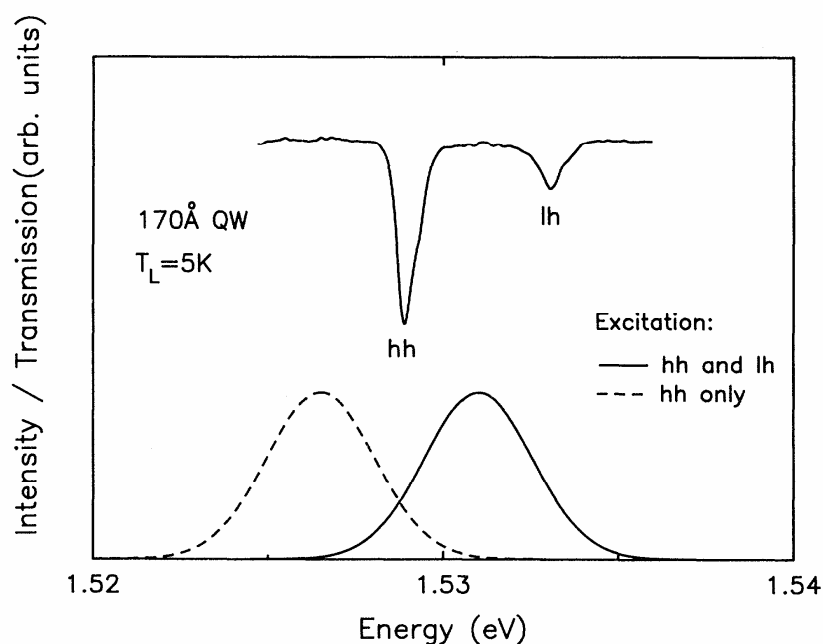


Рис. 10. [из статьи К. Leo *et. al.*, Phys. Rev. **44**, 5726 (1991)]. Вверху – спектр пропускания в области экситонного перехода GaAs квантовой ямы толщиной 17 nm . Внизу – спектры возбуждающих лазерных импульсов.

Поскольку и то и другое состояния являются оптически активными, возможно, в принципе, одновременное возбуждение этих состояний световым импульсом,

имеющим достаточно широкий спектр. Следствием такого возбуждения должно стать появление квантовых биений состояний легкой и тяжелой дырок.

Такие биения действительно наблюдались экспериментально, как это продемонстрировано на рисунке 11. Видно, что, когда спектр возбуждающего светового импульса смещен в сторону меньших энергий и возбуждение попадает в резонанс только с НН-экситонным переходом (пунктирная кривая в нижней части рисунка 1), зависимость сигнала четырехволнового смешения от временной задержки имеет плавный характер (пунктирная кривая на рисунке 11). При перестройке спектра возбуждения в резонанс с обоими переходами (сплошная кривая в нижней части рисунка 1), в сигнале появляются отчетливо выраженные осцилляции (сплошная кривая на рисунке 11). Частота осцилляций хорошо соответствует величине расщепления, определенной по спектру пропускания.

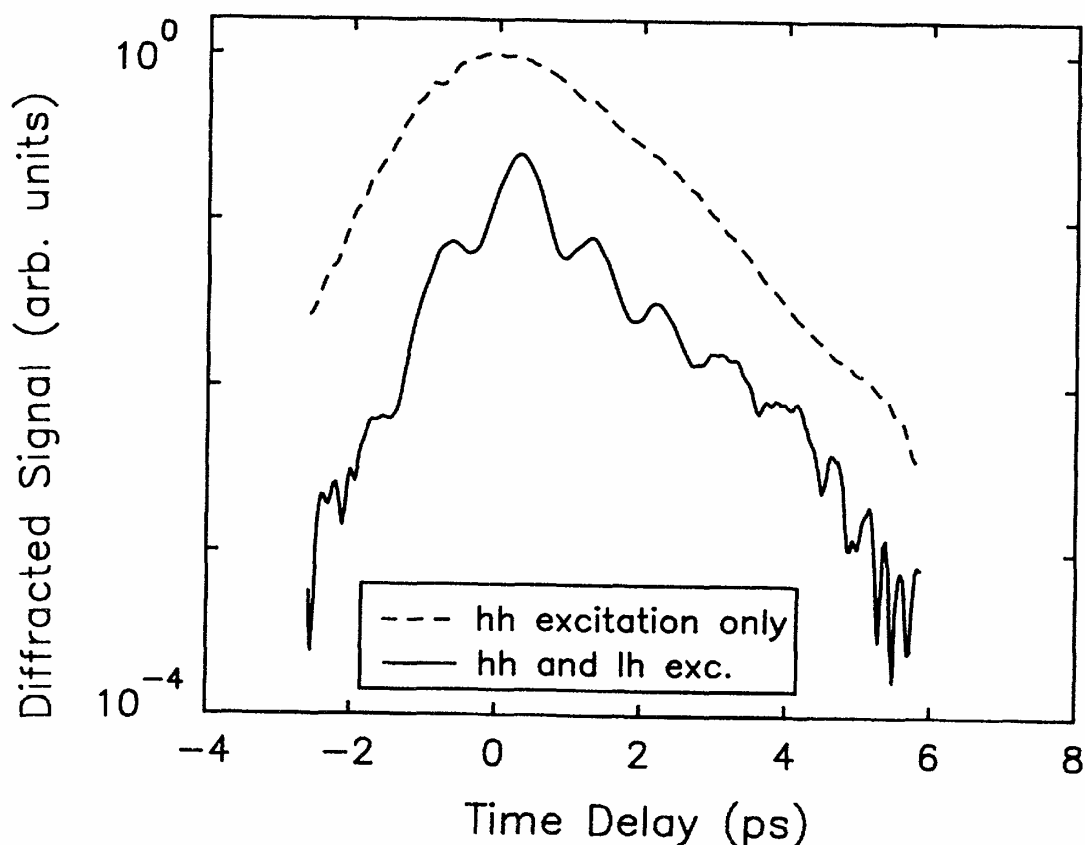


Рис.11. (из той же статьи, что и рис. 10). Временные зависимости сигнала четырехволнового смешения на 17 nm GaAs квантовой яме при возбуждении только НН-экситона (пунктирная кривая) и при одновременном возбуждении ЛН и НН-экситонов (сплошная кривая).

То, что наблюдаемые осцилляции обусловлены квантовыми биениями состояний легкой и тяжелой дырок, подтверждают и приведенные на рисунке 12 результаты теоретического моделирования временной зависимости сигнала

четырёхволнового смещения на этой структуре. Как видно из рисунка, форма расчетной кривой практически полностью воспроизводит результат эксперимента.

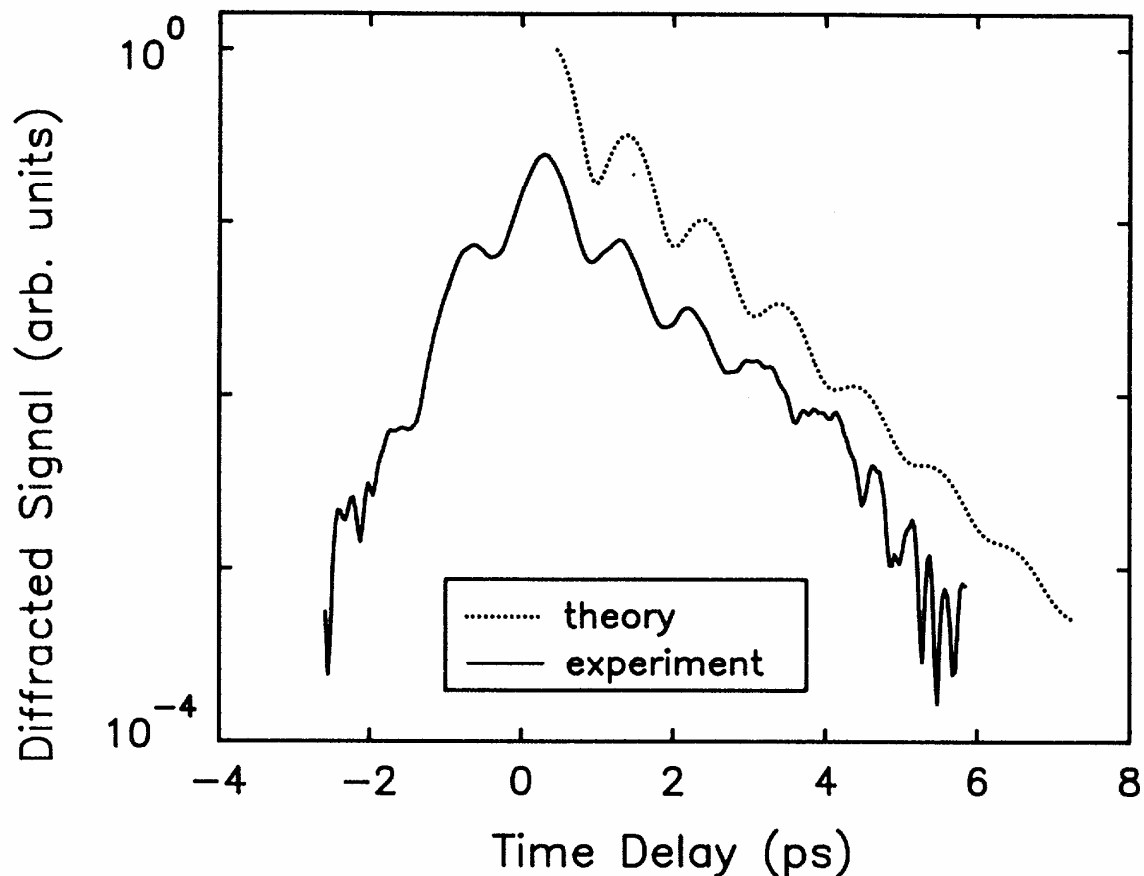


Рис. 12. (из той же статьи, что и Рис. 10). Сравнение экспериментальной кривой (сплошная линия) с результатами расчета, сделанного в рамках простой трехуровневой модели (пунктир).

с. Квантовые биения и интерференция поляризаций.

В ряде случаев, квантовые биения, являющиеся как отмечалось выше, сугубо квантовым эффектом, могут имитироваться чисто классическим эффектом интерференции поляризаций, наведенных в двух независимых системах. Такой эффект возникает в том случае, когда ансамбль двухуровневых систем содержит два подансамбля, частоты переходов в которых различаются на небольшую, но вполне определенную величину.

Короткий световой импульс возбуждает оба подансамбля, и, после прекращения возбуждения, поляризация каждого из них начинает осциллировать на собственной частоте. Интерференция порожденных этими поляризациями электромагнитных волн, колеблющихся на двух близких частотах, приведет к модуляции интенсивности суммарной волны на разностной частоте. Такая модуляция может наблюдаться и в сигнале

свободной индукции и в сигнале четырехволнового смешения. В последнем случае модуляция будет обусловлена интерференцией поляризаций третьего порядка, порожденных в каждом из подансамблей. Зарегистрированная в *реальном времени*, эта модуляция будет неотличима от модуляции вызванной квантовыми биениями.

Существенно различными оказываются, однако, проявления этих эффектов в зависимости сигнала четырехволнового смешения от *временной задержки* между первым и вторым импульсами. При наличии двух невзаимодействующих подансамблей, электромагнитная волна второго импульса отдельно взаимодействует с поляризацией каждого подансамбля, создавая в системе две независимые решетки населенностей. Поскольку подансамбли содержат только двухуровневые системы, то амплитуда поляризации в каждом из них монотонно меняется во времени, не испытывая биений. Тем самым, амплитуды решеток населенностей в каждом из подансамблей должны так же монотонно зависеть от временной задержки между первым и вторым импульсами. Различие частот переходов в подансамблях проявится только в зависимости от задержки относительного пространственного сдвига решеток. Следствием такого сдвига станет изменение фазы модуляции поляризации третьего порядка в реальном времени, однако, если сигнал четырехволнового смешения интегрируется по временному интервалу, значительно превышающему период модуляции, амплитуда сигнала зависит от фазы модуляции практически не должна.

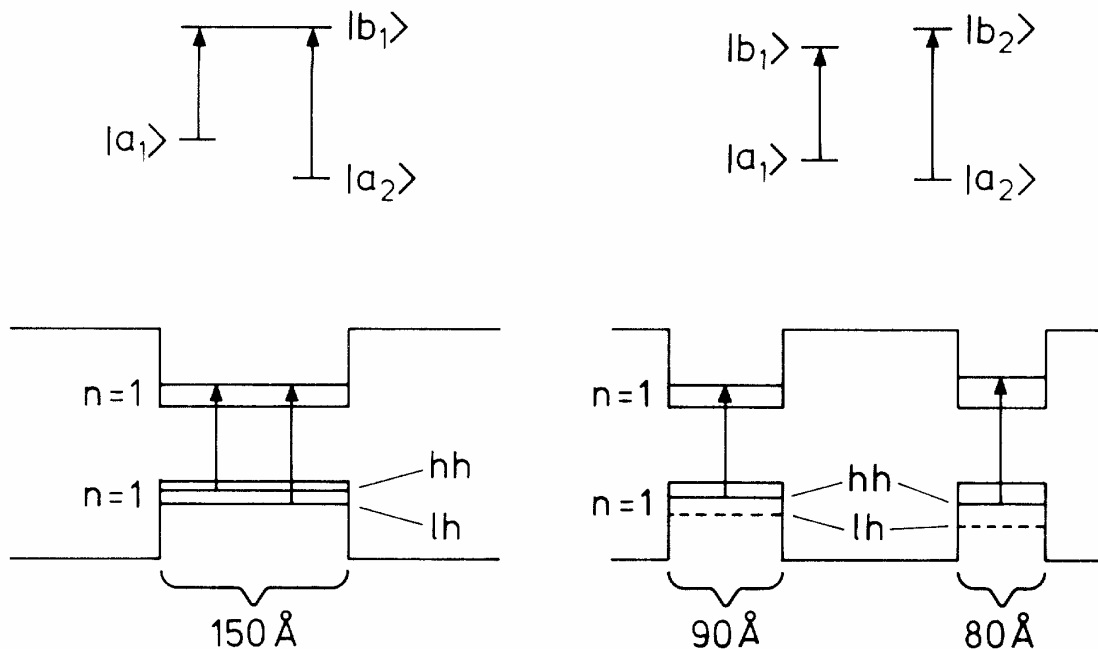


Рис. 13. [из статьи: M. Koch *et. al.*, Phys. Rev. Lett. **69**, 3631 (1992)]. Схематическая иллюстрация энергетической структуры и оптических переходов в реальной трехуровневой системе, сформированной НН и ЛН-экситонами в 15 nm GaS/AlAs квантовой яме (слева) и в комбинации двухуровневых систем, образованной НН-экситонами в GaAs/AlAs квантовых ямах толщинами 8 и 9 nm (справа).

Эти соображения наглядно иллюстрируются результатами эксперимента по наблюдению эффекта четырехволнового смешения на двух разных наноструктурах. Первая из них, схематически показанная на левой части рисунка 13, содержала одиночную GaAs квантовую яму толщиной 15 nm, в которой энергетический зазор между состояниями НН и ЛН-экситонов приблизительно соответствовал ширине спектра возбуждающего светового импульса. Во второй структуре, представляющей собой композицию двух более тонких квантовых ям (8 и 9 nm), расщепление состояний легких и тяжелых дырок превышало ширину импульса, но при этом НН-экситонные переходы в обеих ямах попадали в резонанс с электромагнитной волной (левая часть рисунка 13). Таким образом, первая наноструктура могла рассматриваться как ансамбль трехуровневых систем, на котором возможно наблюдение квантовых биений, а во второй - со светом взаимодействовали два подансамбля двухуровневых систем со слегка отличающимися частотами переходов, что создавало условия для реализации интерференции поляризаций.

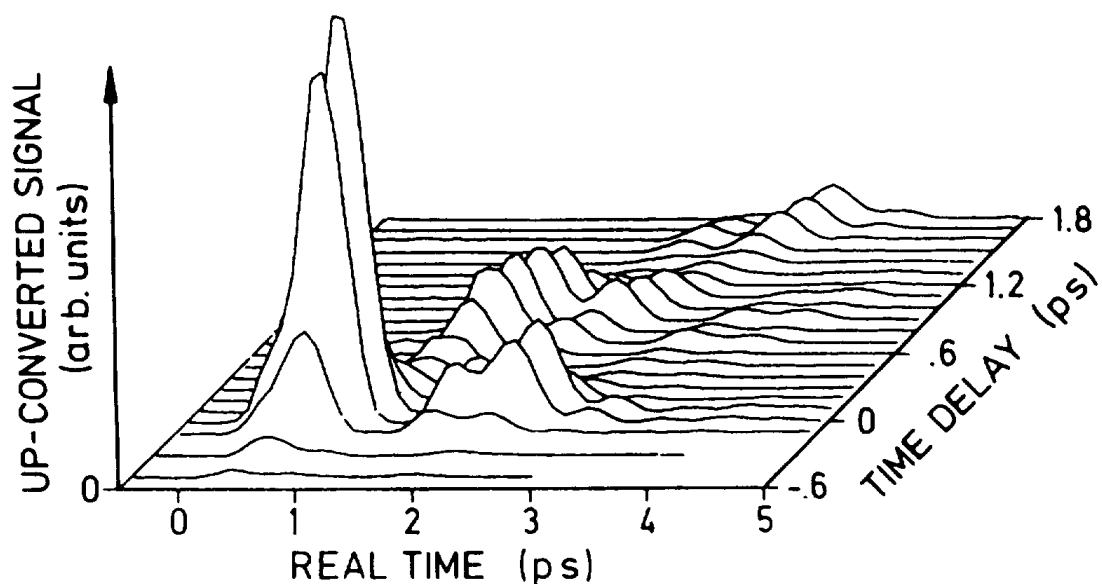


Рис. 14. (из той же статьи, что и рис. 13). Форма сигналов четырехволнового смешения от первого образца, измеренных в реальном времени (real time) при разных значениях задержки (time delay) между первым и вторым световыми импульсами.

Экспериментально измерялись как форма сигнала четырехволнового смешения в реальном времени, так и зависимость сигнала от временной задержки между первым и вторым импульсами. Результат эксперимента на первой структуре продемонстрирован на рисунке 14. Видно, что осцилляции наблюдаются и во временной форме сигнала, и в зависимости амплитуды

сигнала от задержки. Наблюдаемые закономерности полностью описываются в рамках модели квантовых биений.

На рисунке 15 продемонстрированы результаты аналогичных экспериментов на второй структуре, содержащей две близкие по толщине квантовые ямы. Форма сигналов в реальном времени и здесь содержит явно выраженные осцилляции, причем частота осцилляций полностью соответствует разности энергий НН-экситонов в двух ямах. В то же время, зависимость амплитуды сигнала от задержки в данном случае оказывается абсолютно гладкой без каких-либо признаков осцилляций. Такое поведение в точности соответствует случаю интерференции поляризаций.

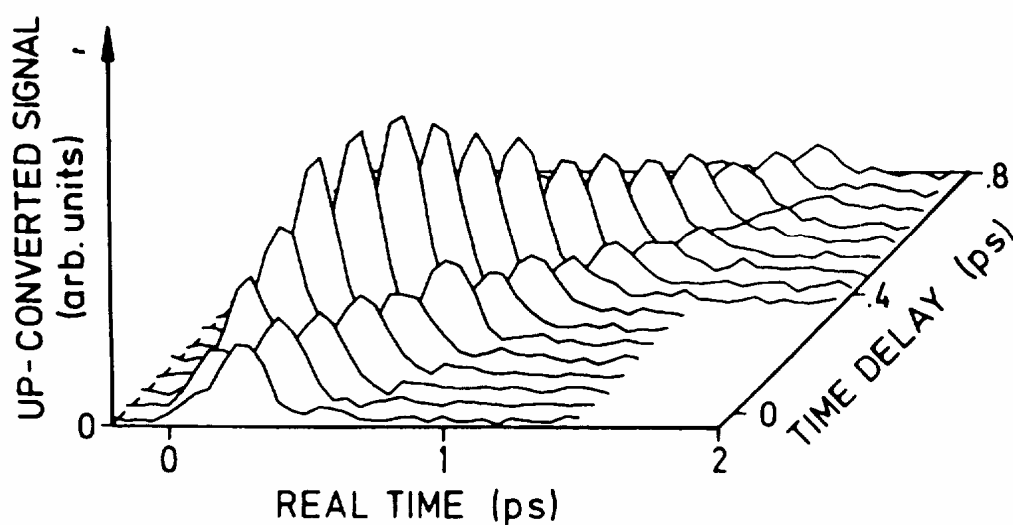


Рис. 15. (из той же статьи, что и рис. 13). То же, что на рисунке 14, но для второго образца.

d. Заключение.

Приведенные в этом разделе примеры далеко не исчерпывают возможных проявлений квантовых биений в оптике полупроводниковых наноструктур. В частности, здесь не рассмотрен целый класс экспериментов по наблюдению биений между уровнями тонкой структуры состояний носителей в полупроводниках. Обсуждение этих экспериментов требует предварительного рассмотрения широкого круга вопросов, связанных с энергетической структурой и динамикой спиновых состояний носителей в полупроводниках, что выходит за круг задач настоящего пособия.

Литература

1. Л. Аллен, Дж. Эберли, "Оптический резонанс и двухуровневые атомы", М., "Мир", 1978.
2. В. М. Акулин, Н. В. Карлов, "Интенсивные резонансные взаимодействия в квантовой электронике", М., "Наука", 1987.
3. В. А. Голенищев-Кутузов, В. В. Самарцев, Б. М. Хабибулин, "Импульсная оптическая и акустическая когерентная спектроскопия", М., "Наука", 1988.
4. С. А. Ахманов, С. Ю. Никитин, "Физическая оптика", М. Изд-во Моск. ун-та, 1998.
5. П. Ю, М. Кардона, «Основы физики полупроводников», М. «Физматлит», 2002.
6. J. Shah, "Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures", Berlin, "Springer-Verlag", 1996.
7. Е. Б. Александров, УФН, **107**, 595 (1972).

Содержание.

1. Введение	3
2. Оптический резонанс в двухуровневой системе	3
3. Резонансное взаимодействие света с ансамблем двухуровневых систем.	9
3.1. Матрица плотности. Населенность и поляризация.	9
3.2. Взаимодействие когерентного света с ансамблем. Оптические уравнения Блоха.	11
3.3. Эффект четырехволнового смешения.	14
3.4. Фотонное эхо	19
3.5. Формирование сигнала эха в модели вектора Блоха	23
4. Динамика когерентных процессов в полупроводниковых гетероструктурах.	25
4.1. Коллективные возбуждения полупроводника.	25
а. Элементарные сведения об энергетической структуре полупроводника.	25
б. Динамика возбуждений.	26
4.2. Когерентные процессы в полупроводниках	29
а. Резонансное возбуждение электрон дырочных пар	29
б. Четырехволновое смешение на экситонной системе. Экситон-экситонное взаимодействие.	30
с. Экситон как трехуровневая система. Аккумулятивное фотонное эхо.	33
д. Инвертирование экситонного состояния π -импульсом.	34
4.3. Квантовые биения экситонных состояний	35
а. Квантовые биения в сигнале четырехволнового смешения.	36
б. Биения состояний легкой и тяжелой дырок.	37
с. Квантовые биения и интерференция поляризаций.	39
д. Заключение.	42
Литература	43
Содержание	44