Письма в ЖЭТФ, том 115, вып. 7, с. 424 – 430

Режим сильной связи и осцилляции Раби в GaAs/AlGaAs гетероструктурах как следствие конденсации электронно-дырочных пар при комнатной температуре

П. П. Васильев[1)]

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 22 февраля 2022 г.
После переработки 9 марта 2022 г.
Принята к публикации 9 марта 2022 г.

Приведены результаты экспериментов по исследованию когерентных осцилляций оптического поля в диапазоне ТГц, наблюдавшихся в GaAs/AlGaAs объемных гетероструктурах при генерации импульсов сверхизлучения. Обнаружены оптические спектры в виде дублетов, характерных для осцилляций Раби с расщеплением в диапазоне 1.3–4.4 мэВ на длине волны 860–890 нм и соответствующие когерентные колебания поля во временной области. Эффект возникал только в режиме сильной связи оптического поля с электронно-дырочной системой. Продемонстрировано, что режим сильной связи в условиях эксперимента возможен только при условии конденсации электронно-дырочных пар в фазовом пространстве. Результаты экспериментов являются еще одним убедительным доказательством конденсации электронов и дырок в объемном GaAs при комнатной температуре, обсуждавшейся в наших работах ранее.

DOI: 10.31857/S1234567822070047

Исследование резонансного взаимодействия электромагнитного поля с квантовыми системами различной природы является важной частью современной квантовой оптики и квантовых информационных технологий [1]. Одним из основных фундаментальных эффектов такого взаимодействия являются осцилляции Раби, представляющих собой периодический обмен энергией между полем и квантовой средой. В последние годы осцилляции Раби интенсивно исследовались в широком спектре квантовых систем, включая ульрахолодные газы, квантовые точки, отдельные спины, сверхпроводящие кубиты, экситонные поляритоны в микрорезонаторах, и др. [2–5]. Возникновение осцилляций Раби характерно не только для взаимодействия поля с одиночными квантовыми излучателями, но также наблюдалось в экспериментах с ансамблями осцилляторов, включая режимы коллективного спонтанного распада (сверхизлучения) [6].

В настоящее время общепризнано, что для возникновения осцилляций Раби необходим режим сильной связи между электромагнитным полем и квантовым излучателем [1, 7, 8]. Количественной величиной этой связи является параметр $g_0 = \mu\sqrt{\hbar\omega/2\varepsilon V}$, где μ есть матричный элемент перехода, $\hbar\omega$ – энергия кванта, ε – диэлектрическая проницаемость среды, а V – объем, занимаемый оптической модой в среде. Очевидно, что для увеличения параметра связи разумно использовать микрорезонаторы различного типа с малой величиной V. Экспериментально и теоретически показано, что увеличение числа N взаимодействующих с полем излучателей приводит к росту параметра связи по формуле $g(N) = g_0\sqrt{N}$ [6, 9, 10]. Необходимым условием возникновения осцилляций Раби является выполнение соотношения

$$2g > (\kappa + \gamma)/2, \tag{1}$$

где κ – величина, обратная времени жизни фотонов в резонаторе, а γ – скорость спонтанной рекомбинации [1]. Это соотношение демонстрирует преимущества использования высокодобротных резонаторов с малой величиной κ [5, 11–13].

Квантовые точки и экситоны-поляритоны в квантовых ямах, помещенные в микрорезонаторы, являются основными полупроводниковыми объектами для исследований в области резонаторной квантовой электродинамики [14–16]. В таких устройствах при определенных условиях возможно наблюдение Бозе конденсации экситон-поляритонов при криогенных температурах [17]. Однако широко распространенные лазерные гетероструктуры с типичными длинами резонаторов 100–500 микрон никогда ранее не рассматривались в качестве кандидатов для исследо-

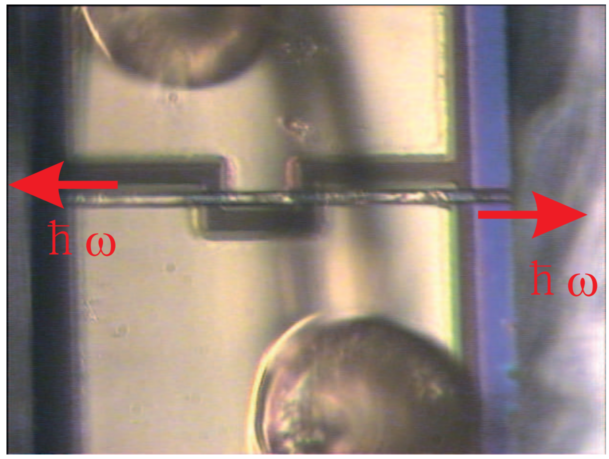
[1)]e-mail: peter@lebedev.ru

ваний режимов сильной связи и наблюдения осцилляций Раби. Действительно, при характерных значениях параметров μ, ε и V величина $g_0/2\pi \sim 10^8$ Гц или 0.4 мкэВ, что на несколько порядков меньше типичных значении $(\kappa + \gamma)$ [18], делает невозможным наблюдение этих эффектов в таких структурах.

Однако, как было указано выше, эффективным методом увеличения связи поля со средой является увеличение числа излучателей, взаимодействующих с одной и той же модой поля. В наших предыдущих работах [19–22] был экспериментально обнаружен факт возникновения сверхизлучающего фазового перехода в лазерных гетероструктурах при комнатной температуре. При этом оказалось, что, электронно-дырочный ансамбль обладает дальним порядком [23], когерентность сверхизлучения превосходит когерентность лазерного излучения, наблюдавшегося в этих же образцах, а распространение импульсов в среде имеет сверхсветовую природу [23, 24]. Кроме того, сверхизлучение имеет суперпуассоновую статистику, а функции Вигнера излучения имеют обширные области отрицательных значений, что говорит о квантовой природе импульсов сверхизлучения [25]. В данной работе экспериментально продемонстрировано, что конденсация электронов и дырок на дно зон, происходящая при посредничестве резонансных фотонов поля при сверхизлучающем квантовом переходе, позволяет осуществить режим сильной связи поля и среды и наблюдать осцилляции Раби.

В экспериментах использовались модифицированные лазерные гетероструктуры на основе GaAs/AlGaAs. Активная область состояла из собственного GaAs толщиной 0.2 микрона. Длина образцов варьировалась от 100 до 450 микрон, ширина излучающей области была в пределах 6–7 микрон. Коэффициент отражения от граней образцов равен 0.32. Вдоль оси резонатора формировались три области с целью реализации режима сверхизлучения [20, 22]. Фото двух образцов представлено на рис. 1. Две области, прилегающие к граням структуры, накачивались импульсами тока с амплитудой, в несколько раз превосходящей порог лазерной генерации.

Для предотвращения возникновения лазерного излучения на центральную часть образцов подавалось постоянное запирающее напряжение в диапазоне – (1–10) В. Это позволяло получать концентрации электронно-дырочных пар более 6×10^{18} см$^{-3}$, достичь выполнения критерия квантового вырождения [26] и наступления режима нестационарной конденсации в фазовом пространстве и сверхизлучающего фазового перехода [21]. При малых токах накачки и отсутствии запирающего напряжения все образцы генерировали стандартное лазерное излучение, спектр которого состоял из одной или нескольких продольных мод резонатора. В режиме сверхизлучения образцы излучали фемтосекундные импульсы с энергией в диапазоне 10–30 пДж, и в определенных диапазонах накачки оптический спектр состоял из дублетов.



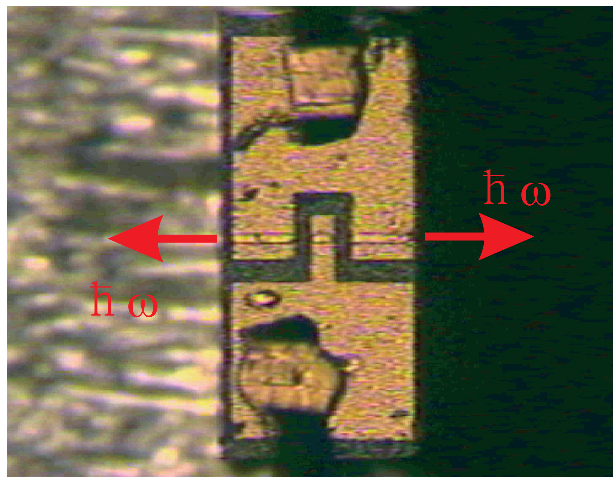


Рис. 1. (Цветной онлайн) Фотографии (вид сверху) двух гетероструктур с длиной 350 (вверху) и 100 (внизу) микрон. Горизонтальная линия соответствует активной области шириной 5–6 микрон. Стрелками показаны направления генерируемого излучения

На рисунке 2 представлены типичные дублетные спектры сверхизлучения, генерируемого разными образцами. Все спектры смещены в длинноволновую область на более, чем 10 нм по сравнению с соответствующими лазерными спектрами. Спектральное расщепление между компонентами составляло от 0.49 до 2.61 нм в зависимости от параметров структур и параметров накачки.

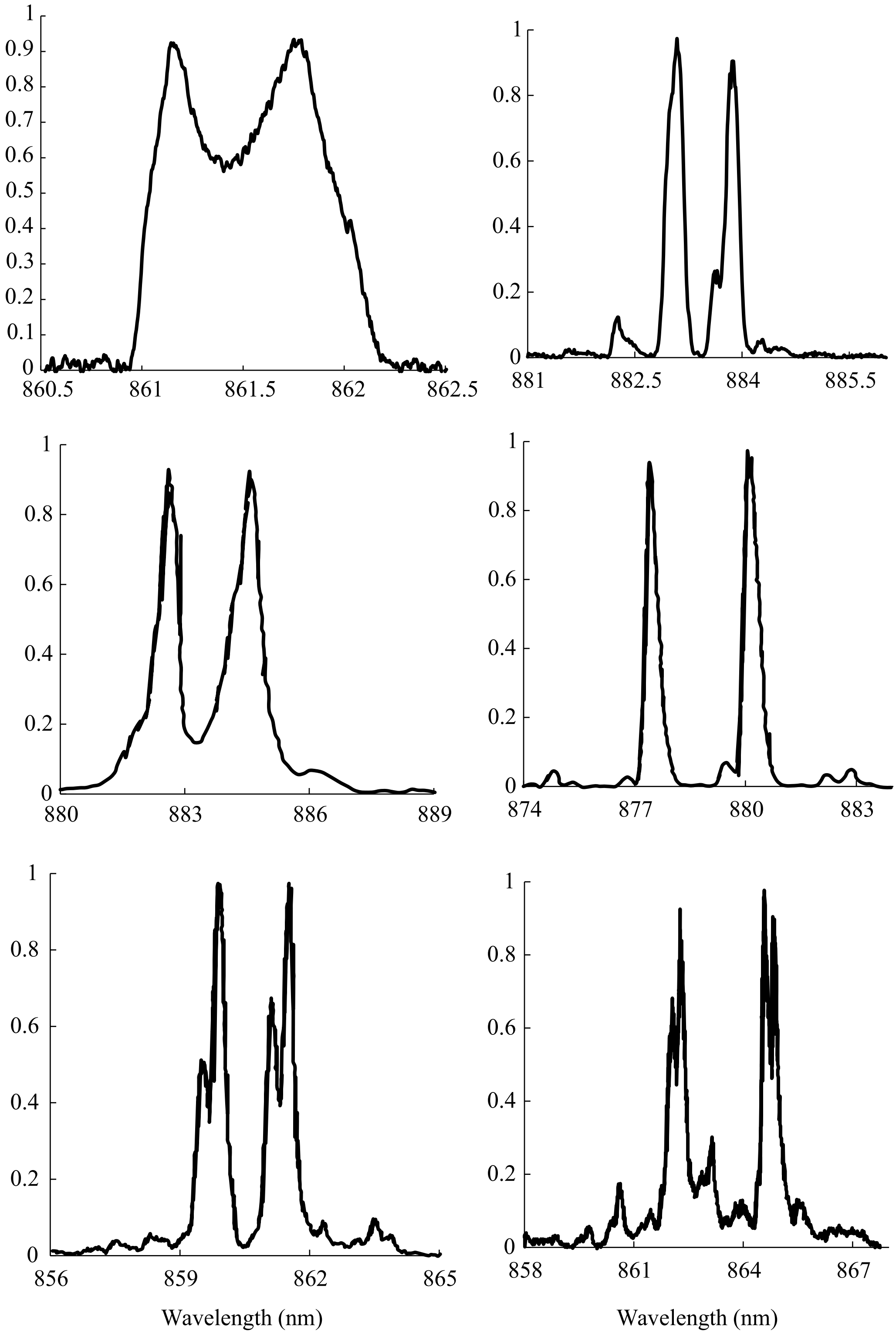


Рис. 2. Оптические спектры 6 образцов в режиме сверхизлучения

Одновременно с измерениями в спектральной области регистрировались автокорреляционные функции интенсивности излучения при генерации второй гармоники в сканирующем интерферометре Майкельсона. Эта методика позволяет с фемтосекундной точностью измерить когерентность и параметры

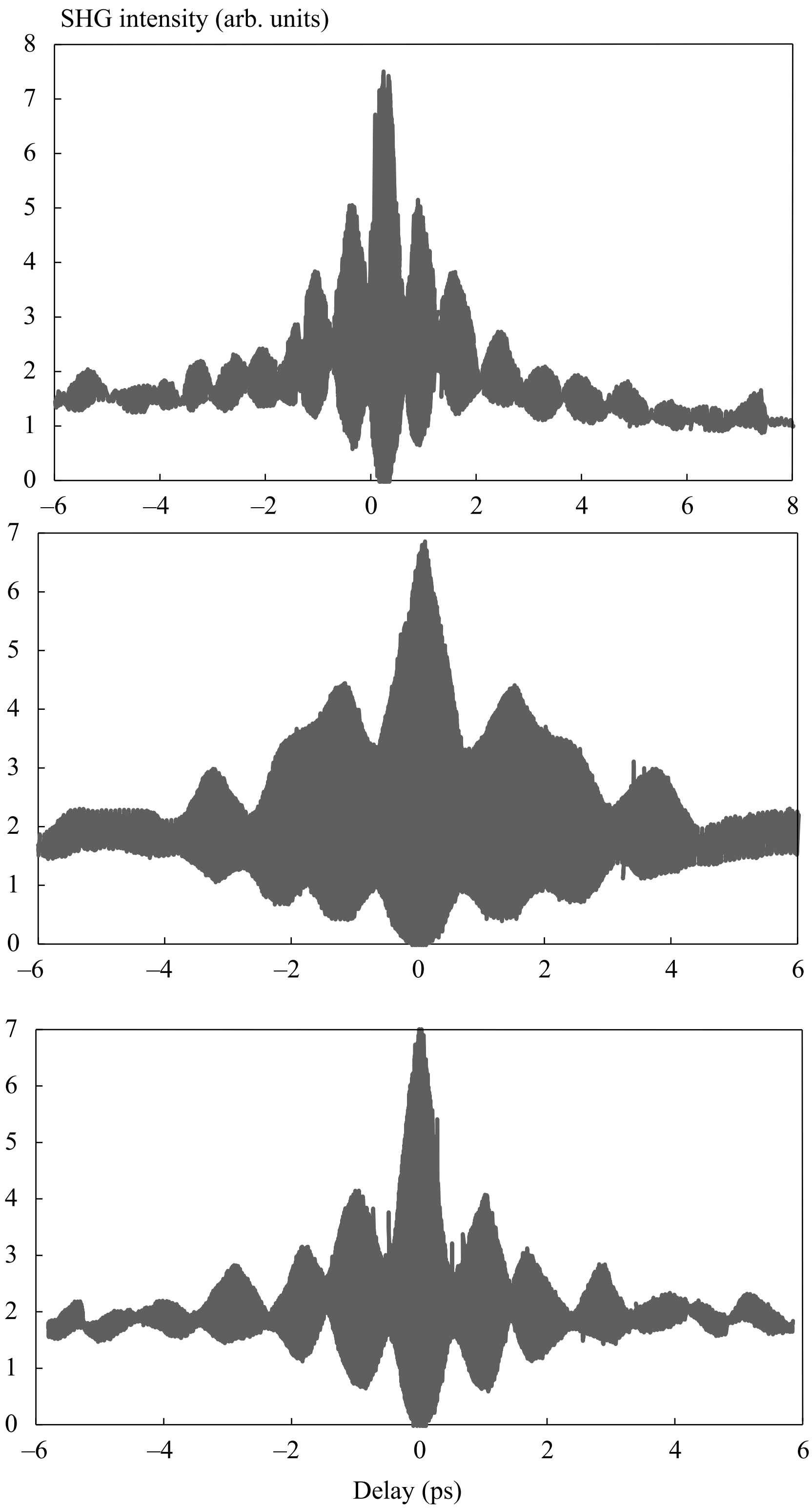


Рис. 3. Автокорреляционные функции 2-го порядка сверхизлучения для образцов S03 при двух значениях запирающего напряжения (вверху) и H16 (внизу)

осцилляций оптического поля [18]. На рисунке 3 показаны типичные автокорреляционные функции интенсивности, снятые с разрешением по интерференционным полосам в сканирующем интерферометре

Майкельсона, для двух образцов с длиной резонатора 100 микрон. Время двукратного обхода света в резонаторе составляло 3.1–3.2 пс. На рисунке 3 хорошо видны осцилляции поля с частотой около 1 ТГц. Расстояние между компонентами спектральных дублетов и частота осцилляций поля зависели от параметров накачки. Рисунок 4 иллюстрирует измеренное спектральное расщепление для одного из образцов как функцию величины запирающего напряжения.

В таблице 1 приведены параметры 6 образцов и соответствующие данные измерений. Экспериментальные данные, представленные на рис. 2-4 и в табл. 1, можно объяснить в рамках режима сильной связи и осцилляций Раби. Действительно, в обычном лазерном режиме в используемых гетероструктурах наблюдение осцилляций Раби невозможно из-за слабой связи электронно-дырочной системы с электромагнитным полем в резонаторе. Типичная ширина лазерной моды в нашем случае составляет не более 0.2 нм. Из-за принципа Паули электроны и дырки сильно “размазаны” по энергии. Поэтому, только малая часть всех носителей заряда, инжектированных в активную область, взаимодействует с лазерной модой. Эту часть легко оценить, зная плотность состояний в зонах, пороговую плотность лазерного излучения, длину волны излучения и ширину лазерной моды. Эта оценка дает значение для величины N при лазерном излучении в диапазоне 10^3–10^4, что явно недостаточно для выполнения критерия (1). Однако в процессе сверхизлучающего фазового перехода происходит нестационарная конденсация электронов и дырок на дно зон. Этот процесс подробно описан нами ранее [21, 27, 28]. В результате конденсации число излучателей, взаимодействующих с полем, быстро растет, и параметр связи $g(N) = g_0\sqrt{N}$ увеличивается на много порядков. Когда число N становится настолько велико, что выполняется критерий (1), то наступает режим сильной связи и, наблюдение осцилляций Раби становится возможным. Ранее нами было выяснено, что с ростом запирающего напряжения увеличивается количество электронно-дырочных пар, сконденсированных на дно зон и участвующих в сверхизлучении [29]. Этот факт объясняет наблюдаемое увеличение спектрального расщепления с напряжением,представленным на рис. 4.

Измеренные величины частоты Раби Ω в табл. 1 достаточно хорошо описываются формулой [1]

$$\Omega = 2\sqrt{g_0^2 N - \frac{(\kappa-\gamma)^2}{4}}. \quad (2)$$

Строго говоря, это выражение имеет ограниченную применимость в случае сильно возбужденных полупроводников, где большую роль могут играть многочастичные взаимодействия [30]. Однако ,эта формула дает качественно правильную оценку частоты Раби и в нашем случае. Действительно, число электронно-дырочных пар, исходя из измерений энергии импульсов сверхизлучения, можно оценить величиной $N = 5.8 \times 10^7 - 1.2 \times 10^8$. Для дипольного момента межзонного перехода μ в GaAs различные публикации дают значения в диапазоне 20–29 Дебай [31]. Для значений параметров κ и V, приведенных в табл. 1, формула (2) дает величины частоты Раби $\Omega/2\pi = (0.6–1.7)$ ТГц, что хорошо соответствует экспериментальным данным.

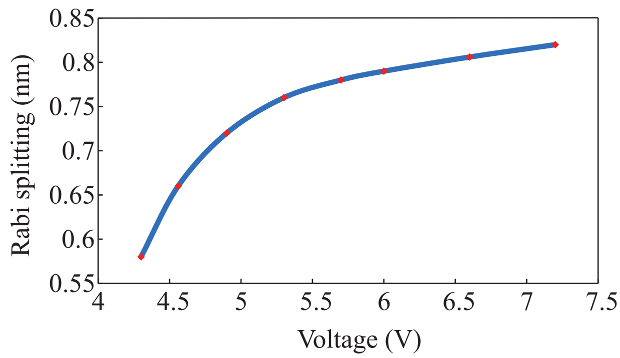


Рис. 4. (Цветной онлайн) Расщепление между компонентами дублета как функция зпирающего напряжения

Стоит обратить внимание еще на одну важную деталь. На двух нижних спектрах на рис. 2 отчетливо видна тонкая структура дублетов, состоящая из двух субгармоник. Появление тонкой структуры можно объяснить взаимодействием квантовых излучателей друг с другом. Действительно, как продемонстрировано в [8, 32, 33], учет этого взаимодействия приводит к более сложной структуре спектра, по сравнению с дублетным спектром, описываемым формулой (2). Из-за взаимодействия диполей друг с другом возникают субгармоники, и спектр становится ассиметричным. Автор воспользовался формулой (5.14) из работы [8] и формулой (10) из работы [32] и вычислил спектр осцилляций Раби для параметров образца H11 из табл. 1. Сравнение рассчетного спектра и экспериментального представлено на рис. 5.

Формы спектров качественно похожи, хотя и отличаются зеркальным расположением субгармоник. Другой причиной возникновения тонкой структуры спектра осцилляций Раби может быть неоднородное пространственное заполнение резонатора когерентным электронно-дырочным состоянием и его разделение на две симметричные части. Этот вопрос требует дополнительного исследования.

Таблица 1. Экспериментальные результаты

Образец	H11	S03	H16	C13	D07	B08
Длина волны излучения (нм)	861	856	864	885	879	881
Длина резонатора (микрон)	100	100	100	150	150	350
Межмодовое расстояние (нм)	0.81	0.84	0.83	0.68	0.67	0.26
Q	1.35×10^4	1.35×10^4	1.35×10^4	1.98×10^4	1.97×10^4	4.63×10^4
V (см$^{-3}$)	1.2×10^{-10}	1.2×10^{-10}	1.2×10^{-10}	1.8×10^{-10}	1.8×10^{-10}	4.2×10^{-10}
$k/2pi$ (ТГц)	0.74	0.74	0.74	0.50	0.50	0.21
Спектральное расщепление (нм)	1.79	2.72	2.52	0.84	2.49	2.37
$\Omega/2\pi$ (ТГц)	0.72	1.09	1.01	0.32	0.97	0.91
Ω (мэВ)	2.91	4.41	4.09	1.29	3.92	3.65

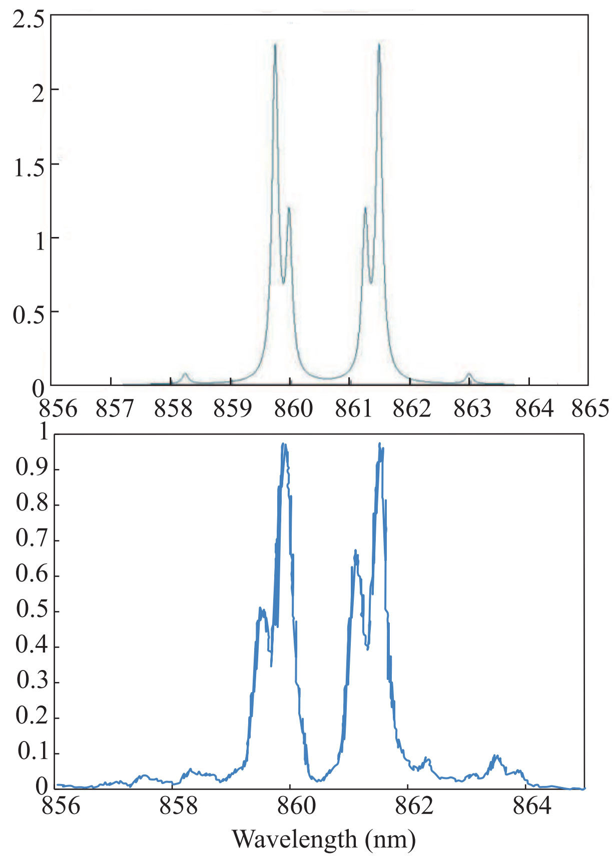


Рис. 5. (Цветной онлайн) Вычисленный с учетом междипольного взаимодействия (вверху) и экспериментальный (внизу) спектр осцилляций Раби

Таким образом, в данной работе были исследованы дублетные спектры и соответствующие когерентные осцилляции оптического поля, генерируемые объемными полупроводниковыми гетероструктурами на основе GaAs/AlGaAs в режиме сверхизлучения. Продемонстрировано, что в отличие от лазерного режима в этих структурах, когда существует режим слабой связи, в случае сверхизлучения наблюдается режим сильной связи поля с полупроводниковой средой. Показано, что режим сильной связи в условиях эксперимента возможен только при условии конденсации достаточно большого числа электронно-дырочных пар в фазовом пространстве. Обнаружены осцилляции Раби со спектральным расщеплением в диапазоне 1.3–4.4 мэВ на длине волны 860–890 нм и соответствующие когерентные колебания поля во временной области с частотами до 1.1 ТГц. Результаты экспериментов являются еще одним убедительным доказательством конденсации электронов и дырок в объемном GaAs при комнатной температуре, обсуждавшейся в наших работах ранее.

В заключение автор выражает благодарность Х. Кан и Х. Ота за создание образцов гетероструктур и Р. Пенти за поддержку.

1. G. S. Agarwal, *Quantum Optics*, Cambridge University Press, Cambridge (2012).
2. Y. Ota, D. Takamiya, R. Ohta, H. Takagi, N. Kumagai, S. Iwamoto, and Y. Arakawa, Appl. Phys. Lett. **112**, 093101 (2018).
3. W. Guerin, T. S. do Espirito Santo, P. Weiss, A. Cipris, J. Schachenmayer, R. Kaiser, and R. Bachelard, Phys. Rev. Letts. **123**, 243401 (2019).
4. F. Yoshihara, Y. Nakamura, F. Yan, S. Gustavsson, J. Bylander, W. D. Oliver, and J.-S. Tsai, Phys. Rev. B **89**, 020503 (2014).
5. G. Khitrova, H. M. Gibbs, M. Kira, S. W. Koch, and A. Scherer, Nat. Phys. **2**, 81 (2006).
6. Y. Kaluzny, P. Goy, M. Gross, J. M. Raimond, and S. Haroche, Phys. Rev. Lett. **51**, 1175 (1983).

7. D. S. Dovzhenko, S. V. Ryabchuk, Yu. P. Rakovich, and I. R. Nabiev, Nanoscale **10**, 3589 (2018).
8. A. F. Kockum, A. Miranowicz, S. De Liberato, S. Savasta, and F. Nori, Nat. Rev. Phys. **1**, 19 (2019).
9. G. S. Agarwal, J. Opt. Soc. Am. B **2**, 480 (1985).
10. S. Rudin and T. L. Reineckle, Phys. Rev. B **59**, 10227 (1999).
11. C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa, Phys. Rev. Lett. **69**, 3314 (1992).
12. A. A. Anappara, S. De Liberato, and A. Tredicucci, Phys. Rev. B **79**, 201303(R) (2009).
13. С. С. Демирчян, И. Ю. Честнов, С. М. Аракелян, А. П. Алоджанц, А. В. Кавокин, Письма в ЖЭТФ **103**, 56 (2016).
14. H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara, and H. Ando, Phys. Rev. Lett. **87**, 246401 (2001).
15. S. V. Poltavtsev, M. Reichelt, I. A. Akimov, G. Karczewski, M. Wiater, T. Wojtowicz, D. R. Yakovlev, T. Meier, and M. Bayer, Phys. Rev. B **96**, 075306 (2017).
16. J. Cao, S. De Liberato, and A. V. Kavokin, New J. Phys. **23**, 113015 (2021).
17. H. Deng, H. Haug, and Y. Yamamoto, Rev. Mod. Phys. **82**, 1489 (2010).
18. P. Vasil'ev, *Ultrafast Diode Lasers: Fundamentals and Applications*, Artech House, Norwood (1995).
19. П. П. Васильев, Х. Кан, Х. Ота, Т. Хирума, ЖЭТФ **120**, 1486 (2001).
20. P. P. Vasil'ev, H. Kan, H. Ohta, and T. Hiruma, JETP **96**, 310 (2003).
21. P. P. Vasil'ev, Phys. Stat. Sol. (b) **241**, 1251 (2004).
22. П. П. Васильев, Письма в ЖЭТФ **82**, 129 (2005).
23. P. P. Vasil'ev, V. Olle, R. V. Penty, and I. H. White, EPL **104**, 40003 (2013).
24. P. P. Vasil'ev, R. V. Penty, and I. H. White, Light Sci. Appl. **5**, e16086 (2016).
25. P. P. Vasil'ev and R. V. Penty, New J. Phys. **22**, 083046 (2020).
26. P. P. Vasil'ev and R. V. Penty, EPL **133**, 37004 (2021).
27. P. P. Vasil'ev and I. V. Smetanin, Phys. Rev. B **74**, 125206 (2006).
28. П. П. Васильев, Письма в ЖЭТФ **115**, 35 (2022).
29. P. P. Vasil'ev, Rep. Prog. Phys. **72**, 076501 (2009).
30. M. Kira and S. W. Koch, *Semiconductor Quantum Optics*, Cambridge University Press, Cambridge (2012).
31. A. Schülzgen, R. Binder, M. E. Donovan, M. Lindberg, K. Wundke, H. M. Gibbs, G. Khitrova, and N. Peyghambarian, Phys. Rev. Lett. **82**, 2346 (1999).
32. A. Joshi and S. V. Lawande, J. Mod. Opt. **40**, 1035 (1993).
33. G. S. Agarwal, R. K. Bullough, and N. Nayak, Opt. Commun. **85**, 202 (1991).