

## ДИНАМИКА ЧЕТЫРЕХВОЛНОВОГО СМЕШИВАНИЯ НА ЭКСИТОНАХ В КВАНТОВОМ ОПТИЧЕСКОМ МИКРОРЕЗОНАТОРЕ

Й.Фу<sup>1)</sup>, М.Вилландер<sup>1)</sup>, Е.Л.Ивченко<sup>°</sup>, А.А.Киселев<sup>°</sup>

*Physical Electronics and Photonics, Department of Physics, University of Göteborg and  
Chalmers University of Technology  
S-412 96 Göteborg, Sweden*

<sup>°</sup>*Физико-технический институт им.А.Ф.Иоффе РАН  
194021 Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 4 ноября 1996 г.

Построена теория вырожденного четырехволнового смешивания в полупроводниковом оптическом резонаторе с квантовыми ямами. По сравнению с одиночной квантовой ямой нелинейный отклик микрополости может возрасти на четыре-пять порядков. Для нелинейностей типа  $P^2E$  и  $P^3$  затухающий дифрагированный сигнал осциллирует с периодом, определяемым расщеплением Раби; для биэкситонного механизма нелинейности сигнал содержит затухающие обертоны расщепления Раби и энергии связи биэкситона.

PACS: 42.50.Fx, 78.45.+h, 78.47.+p, 78.66.-w

Естественный путь для усиления взаимодействия света с твердым телом состоит в настройке на резонансные условия возбуждения. Размерное квантование экситонов в полупроводниковых наноструктурах приводит к дополнительному возрастанию резонансного локального отклика. Квантование фотона в микрорезонаторе со встроенной квантовой ямой открыло путь для дальнейшего значительного увеличения коэффициента экситон-фотонной связи [1-4]. Особый интерес квантовые микрорезонаторы представляют для нелинейной оптики, поскольку по сравнению с линейным нелинейный отклик намного чувствительнее к возрастанию коэффициента связи. В настоящей работе развита теория вырожденного, или двухпучкового, четырехволнового смешивания в полупроводниковом микрорезонаторе с квантовой ямой, помещенной между брэгговскими зеркалами. В настоящее время это нелинейное оптическое явление широко исследовано в объемных кристаллах и структурах с квантовыми ямами (см., например, [5-10]). Два последовательных когерентных импульса с волновыми векторами  $k_1$  и  $k_2$  порождают динамическую дифракционную решетку с волновым вектором  $2k_2 - k_1$ , на которой происходит рассеяние одного из пучков в направлении  $2k_2 - k_1$ . В альтернативном процессе нелинейного взаимодействия два фотона  $k_2$  возбуждают биэкситон, который далее распадается под действием импульса  $k_1$  на фотоны  $k_1$  и  $2k_2 - k_1$ . На опыте оба механизма можно разделить, используя линейно и циркулярно поляризованные пучки [11].

Мы рассматриваем многослойную гетероструктуру, выращенную с использованием четырех композиционных материалов  $A$ ,  $B$ ,  $C$ ,  $D$  и состоящую из  $N_l$  пар слоев  $C/B$  распределенного брэгговского отражателя, активного слоя  $A$  с квантовой ямой  $D$  в центре и  $N_r$  пар слоев  $B/C$  правого зеркала, выращенного на подложке  $D$ . Оптические свойства диэлектрических зеркал характеризуются амплитудными коэффициентами  $r_{mj}$ ,  $r'_{mj}$  отражения от левого,  $j=l$ , и правого,  $j=r$ , зеркал для света, падающего соответственно со

<sup>1)</sup>Y.Fu, M Willander

стороны активного слоя и извне структуры (из вакуума или подложки), а также коэффициентами пропускания  $t_{mj}$ ,  $t'_{mj}$  через зеркало  $j$ . Предполагается, что  $1 - |r_{mj}|^2 \ll 1$  и поглощение в брэгговском отражателе отсутствует, то есть  $(n_{ext,j}/n_c)|t_{mj}|^2 = (n_c/n_{ext,j})|t'_{mj}|^2 = 1 - |r_{mj}|^2 = 1 - |r'_{mj}|^2$ , где  $n_{ext,j}$  - показатель преломления внешней среды, примыкающей к зеркалу  $j$  (в частности,  $n_{ext,j} = 1$ ).

Динамика фотонной моды в микрополости и экситона в квантовой яме описывается в рамках модели двух связанных осцилляторов:

$$\begin{aligned} \left[ \frac{\partial}{\partial t} + i(\omega_0 - \bar{\omega}) + \Gamma \right] \bar{P}(t) &= i\eta\Gamma\Delta_0\bar{E}(t) + \bar{F}_{NL}(t), \\ \left[ \frac{\partial}{\partial t} + i(\omega_c - \bar{\omega}) + \gamma_c \right] \bar{E}(t) &= \bar{\Gamma} \left[ \frac{i}{\eta}\bar{P}(t) + \frac{t'_{ml}}{2}\bar{E}_0(t) \right]. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь  $\bar{\omega}$  - несущая частота световых импульсов,  $\omega_0$  и  $\omega_c$  - резонансные частоты экситона и фотонной моды,  $\Gamma$  и  $\Gamma_0$  обозначают соответственно нерадиационное и радиационное затухания экситона в одиночной квантовой яме,  $\gamma_c$  - затухание фотонной моды, определяемое темпом ухода через левое и правое зеркало,  $\bar{\Gamma} = 8\gamma_c^2(2 - |r_{ml}|^2 - |r_{mr}^2|)^{-1}$ ,  $\bar{P}(t)$  - медленно меняющаяся амплитуда экситонной поляризации, усредненная по слою квантовой ямы толщиной  $L_z$ ,  $\bar{E}(t)$  - электрическое поле в центре квантовой ямы,  $\bar{E}_0(t)$  - медленно меняющаяся амплитуда падающего излучения. Оно состоит из двух (например, лоренцевских импульсов с волновыми векторами  $k_j = (k_{jx}, 0, k_{jz})$ , где  $(x, z)$  - плоскость падения. Обычно в экспериментах по четырехволновому смешиванию векторы  $k_1$  и  $k_2$  образуют малые углы с главной осью структуры  $z$ , что позволяет пренебречь влиянием  $z$ -компоненты электрического поля и не учитывать угловую зависимость коэффициентов пропускания, отражения и нелинейного смешивания. В дальнейшем мы опускаем фазовые множители  $\exp(ik_{j,x}x)$ , помня, что  $E_1$ ,  $E_2$  и  $E_3$  обозначают амплитуды трех волн  $k_1$ ,  $k_2$  и  $k_3 = 2k_2 - k_1$ , определяемых независимо. Остальные обозначения, введенные в (1):  $\eta = \epsilon_b/(2\pi kL_z)$ ,  $k = (\omega_0/c)n_c$ ,  $\epsilon_b$  - фоновая диэлектрическая проницаемость материала квантовой ямы,  $n_c$  - показатель преломления активного слоя  $A$ . Различием между  $n_c^2$  и  $\epsilon_b$  пренебрегается.

Нелинейное слагаемое  $\bar{F}_{NL}(t)$  наводит поляризацию третьего порядка. Мы рассмотрели последовательно нелинейный вклад типа  $P^2E$  (аналогичный вклад описывает насыщение обычной двухуровневой системы), ангармонический вклад типа  $P^3$ , для которых [6, 7, 9]

$$\bar{F}_{NL}(t) = i\bar{P}_1^*(t)\bar{P}_2(t)[\beta_1\bar{P}_2(t) + \beta_2\bar{E}_2(t)], \quad (2)$$

а также биэкситонный механизм [8] с  $\bar{E}_{NL}(t) = i\gamma_{bi}B(t)\bar{E}_1^*(t)$ , где  $B$  - амплитуда биэкситонной волновой функции. Для нее должно быть записано дополнительное уравнение:

$$\left[ \frac{\partial}{\partial t} + i(\omega_0 - \bar{\omega} - \delta_{bi}) + \Gamma_{bi} \right] B(t) = -i\gamma_{bi}\bar{P}_2(t)\bar{E}_2(t), \quad (3)$$

где  $\hbar\delta_{bi}$ ,  $\Gamma_{bi}$  - энергия связи и затухание биэкситона.

Уравнения (1) играют роль уравнений Максвелла-Блоха, используемых при описании четырехволнового смешивания в объемных материалах. Ранее модель двух связанных осцилляторов была успешно использована для описания линейных оптических свойств полупроводниковых микрополостей с квантовыми ямами [2-4]. Из однородных уравнений, соответствующих  $\bar{E}_0(t) = 0$  и  $\bar{F}_{NL}(t) =$

0, можно получить выражение для комплексных собственных частот связанных экситон-фотонных мод (экситонных поляритонов)

$$\omega_{\pm} = \frac{1}{2}(\omega_0 + \omega_c) - \bar{\omega} - i\gamma \pm \Omega, \quad \Omega = \sqrt{\tilde{\Gamma}\Gamma_0 + \frac{1}{4}[\omega_0 - \omega_c + i(\gamma_c - \Gamma)]^2}, \quad (4)$$

где  $\gamma = (\gamma_c + \Gamma)/2$ . Вещественная часть удвоенной частоты  $\Omega$  определяет расщепление резонансных частот экситонных поляритонов в квантовой микрополости и называется частотой Раби.

**Нелинейность типа "насыщение двухуровневых переходов".** Процедура расчета сигнала четырехволнового смешивания включает решение а) линейных уравнений (1) для поляризации  $\bar{P}_1$  и поля  $\bar{E}_1$  волны  $k_1$ , индуцированных падающим импульсом  $E_{0,1}$ , б) линейных уравнений (1) для отклика системы  $\bar{P}_2$ ,  $\bar{E}_2$  на импульс  $E_{0,2}$ , и в) линейных уравнений для  $\bar{P}_3$ ,  $\bar{E}_3$  рассеянной волны с неоднородным источником в форме (2) при  $\beta_1 = 0$ ,  $\beta_2 \neq 0$ . Выходящее электрическое поле связано с полем в центре квантовой ямы простым соотношением  $\bar{E}_j(t) = (t_{mj}/2)\bar{E}_3(t)$ .

Аналитические результаты получены при условии двойного резонанса  $\bar{\omega} = \omega_0 = \omega_c$ . Для достаточно коротких импульсов, таких что  $|\omega_{\pm}|$  мало по сравнению с обратной длительностью импульса  $\tau_p^{-1}$ , в отклике можно ограничиться только слагаемыми, содержащими долгоживущие экспоненциальные функции  $\exp(-i\omega_{\pm}t)$ . В этом приближении для нелинейного источника получаем

$$\bar{F}_{NL}(t) = i\theta(t + \tau)\theta(t)F_{NL}^{(0)}e^{-\gamma\tau}e^{-3\gamma t} \sin[\Omega(t + \tau)] \sin \Omega t (\cos \Omega t - s \sin \Omega t),$$

$$F_{NL}^{(0)} = \frac{1}{8}\beta_2(t'_{ml}\tilde{\Gamma})^3 \left(\eta \frac{\Gamma_0}{\Omega}\right)^2 A_1 A_2^2, \quad A_n = \int_{-\infty}^{+\infty} \bar{E}_{0,n}(t)dt, \quad (5)$$

где  $s = (\gamma_c - \Gamma)/2\Omega$ ,  $\tau = t_2 - t_1$  - временная задержка между приходом первого и второго импульсов, и мы положили  $t_2 = 0$ . В соответствии с (5) электрическое поле дифрагированной волны  $2k_2 - k_1$  может быть представлено в виде

$$\bar{E}_3(t) = e^{-\gamma\tau} [f_1(t) \cos \Omega\tau + f_2(t) \sin \Omega\tau], \quad (6)$$

где функции  $f_1(t)$ ,  $f_2(t)$  не зависят от  $\tau$ . Проинтегрированная по времени интенсивность волны 3 принимает вид

$$S_3(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} [\bar{E}_3(t)]^2 dt = S e^{-12\gamma\tau} [1 + a \sin(2\Omega\tau + \phi_0)]. \quad (7)$$

Таким образом, интегральный нелинейный сигнал  $S_3(\tau)$  состоит из двух затухающих слагаемых: монотонного и осциллирующего. Параметры  $S$ ,  $a$ ,  $\phi_0$  в выражении (7) определяют соответственно значение монотонного вклада при нулевой задержке, относительную амплитуду и начальную фазу осциллирующего вклада. На рис.1 представлены результаты расчета коэффициента  $a$  как функции безразмерных параметров  $X = \Omega/\gamma$  и  $Y = (\gamma_c - \Gamma)/2\gamma$ . Видно, что модуляция сигнала оказывается значительной в широком диапазоне значений  $X$  и  $Y$ .

Если  $\gamma$  мало по сравнению с расщеплением Раби (так называемый режим сильной экситон-фотонной связи), то для  $S$ ,  $a$  и  $\phi_0$  могут быть получены

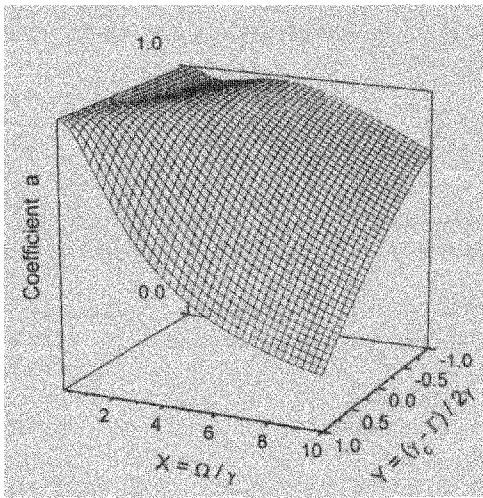


Рис.1. Относительная амплитуда  $a$  осциллирующей компоненты интегрального сигнала четырехволнового смешивания в зависимости от безразмерных параметров  $\Omega/\gamma$  и  $(\gamma_c - \Gamma)/2\gamma$  для механизма нелинейности типа насыщение

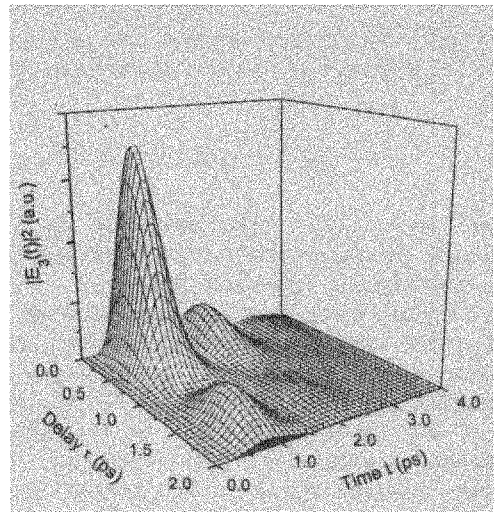


Рис.2. Разрешенный во времени сигнал четырехволнового смешивания  $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  при различных временах задержки между световыми импульсами. Значения параметров, использованные при расчете, указаны в тексте. Реальное время  $t$  отсчитывается от момента прихода второго импульса

простые аналитические выражения. Пренебрегая слагаемыми высших порядков по  $\gamma/\Omega$ , находим

$$S = \frac{1}{12} \frac{1}{(8\gamma)^3} \left( \frac{\tilde{\Gamma} |F_{NL}^{(0)}|}{\eta\Omega} \right)^2, \quad a(X, Y) = \frac{6 - 4Y}{X}, \quad \phi_0 = 0. \quad (8)$$

Сравнение показывает, что при  $X \geq 4$  приближенная формула для параметра  $a$  хорошо воспроизводит результаты численного расчета. Учитывая, что нелинейные сигналы в геометрии на отражение и пропускание связаны с  $S_3(\tau)$  соотношениями  $S_{3,j}(\tau) = |t_{mj}|^2 S_3(\tau)/4$ , получаем

$$S_{3,j}(0) = \frac{1}{12} \frac{n_{ext,i}^3}{n_c^2 n_{ext,j}} \frac{\gamma_{cj} \gamma_{cl}^3 \Omega^2}{(8\gamma)^3} (\eta\beta_2 A_1 A_2^2)^2. \quad (9)$$

**Нелинейность ангармонического вида.** Проводя аналогичное рассмотрение для ангармонического механизма нелинейности в режиме сильной экситон-фотонной связи, получаем

$$S_3(\tau) = S' e^{-2\gamma\tau} \left( 1 + \frac{4}{5} \cos 2\Omega\tau \right), \quad S' = S \left( \frac{\beta_1 \eta \Gamma_0}{\beta_2 \Omega} \right)^2, \quad (10)$$

где  $S$  задано выражением (8). Заметим, что в отличие от рассмотренного выше механизма нелинейности относительная амплитуда осциллирующей компоненты в формуле (10) оказывается постоянной, а фаза сдвинута на  $\pi/2$ .

**Биэкситонный механизм нелинейности.** Этот механизм не вносит вклада в четырехволновое смешивание при циркулярной поляризации возбуждения, однако играет важную роль в формировании дифрагированного сигнала при

линейной поляризации импульсов [11]. При резонансе  $\bar{\omega} = \omega_0$  и в случае коротких импульсов амплитуда бикситонной волновой функции, индуцированная вторым импульсом, может быть записана в виде интеграла

$$B(t) = -i\gamma_{b_1}\theta(t) \int_0^t dt' \exp[-(\Gamma_{b_1} - i\delta_{b_1})(t - t')] \bar{P}_2(t') \bar{E}_2(t'), \quad (11)$$

а нелинейный источник принимает вид

$$\bar{F}_{NL}(t) = \gamma_{b_1}^2 \theta(t) \bar{E}_1^*(t) \int_0^t dt' \exp[-(\Gamma_{b_1} - i\delta_{b_1})(t - t')] \bar{P}_2(t') \bar{E}_2(t'). \quad (12)$$

Подставляя это выражение в уравнение (1) для  $\bar{P}(t)$ , мы можем далее рассчитать  $\bar{E}_3(t)$  и  $S_3(\tau)$ .

**Результаты расчета и обсуждение.** На рис.2 представлена эволюция разрешенного во времени дифрагированного сигнала,  $|E_3(t)|^2$ , при увеличении задержки между импульсами. Расчет проводился для нелинейного процесса типа насыщение при резонансных условиях  $\bar{\omega} = \omega_0 = \omega_c$ . Использовались параметры  $\lambda$ -полости [1] с активным слоем из  $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$  и брэгговскими отражателями, состоящими из 24 пар  $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}/\text{AlAs}$  со стороны вакуума и 33 пар  $\text{AlAs}/\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$  со стороны подложки:  $n_{ext,\tau} = 3.63$ ,  $n_1 = 3.17$ ,  $n_2 = 3.45$ ,  $n_c = 3.54$ ,  $n_{ext,l} = 1$ . Предполагалось, что в центр активного слоя встроена одиночная квантовая яма с параметрами экситона  $\Gamma = 1.0\text{пс}^{-1}$  и  $\Gamma_0 = 0.05\text{пс}^{-1}$ . Для такой структуры вычисленные значения  $\gamma_c$  и  $\bar{\Gamma}$  равны соответственно  $0.51\text{пс}^{-1}$  и  $117\text{пс}^{-1}$ , а расщепление Раби  $2\Omega$  составляет  $4.8\text{пс}^{-1}$ . Сигнал на рис.2 представляет собой квантовые биения между экситонной и фотонной модами со значительной модуляцией как по оси  $t$ , так и по оси  $\tau$ . Сравнение со структурой с одиночной квантовой ямой и покрывающим слоем толщиной  $d$ , удовлетворяющей условию  $kd = \pi$ , показывает, что локализация фотонной моды в микрорезонаторе с помощью брэгговских отражателей приводит к усилению нелинейного сигнала на  $4 \div 5$  порядков.

На рис.3 показана временная зависимость сигнала  $|E_3(t)|^2$  для бикситонного механизма нелинейности (сплошные линии) и механизма типа насыщение (пунктирные линии). Расчет выполнен при задержке между импульсами  $\tau = 0.5\text{пс}^{-1}$ , для частоты Раби  $2\Omega = 20\text{пс}^{-1}$  и для бикситонных параметров  $\Gamma_{b_1} = 0.1\text{пс}^{-1}$ ,  $\delta_{b_1} = 3.5\text{пс}^{-1}$  (или  $\hbar\delta_{b_1} = 2.3\text{мэВ}$ ) [12]. В соответствии с (7) пунктирная кривая представляет затухающие осцилляции с единственным периодом. В случае формирования нелинейной волны через бикситон при  $\Omega \gg \delta_{b_1}$ ,  $2\Omega$ -осцилляции промодулированы вторым периодом  $T_{b_1} = 2\pi/\delta_{b_1}$ , определяемым бикситонной энергией связи. При сравнимых, но несоизмеримых значениях  $\Omega$  и  $\delta_{b_1}$  затухающие осцилляции в нелинейном сигнале носят нерегулярный характер.

Представленная теория может быть обобщена на случай структур с неоднородностями усреднением интенсивности нелинейного сигнала по распределению частот экситонного резонанса и фотонной моды. Качественно возможные последствия неоднородного уширения могут быть прослежены по влиянию на нелинейный сигнал расстройки между резонансными частотами фотонной моды в микрополости и экситона в квантовой яме: с ростом расстройки амплитуда сигнала падает при одновременном увеличении частоты модуляции в соответствии с формулой (4).

Таким образом, мы теоретически исследовали вырожденное четырехволновое смешивание в микрорезонаторах с квантовыми ямами. Последовательно

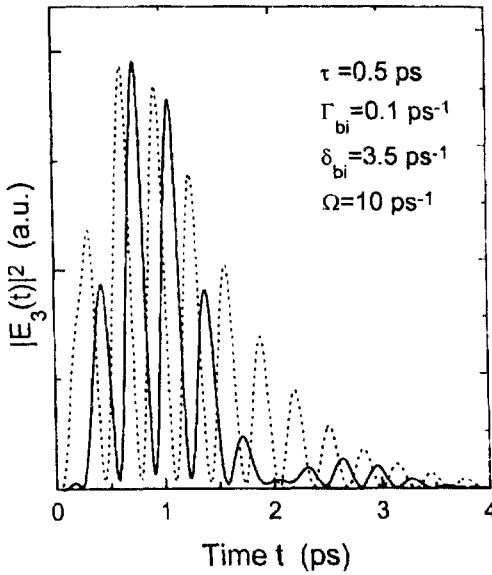


Рис.3. Разрешенный во времени нелинейный сигнал, рассчитанный для процесса четырехволнового смешивания через биэкситон (сплошная кривая) и для механизма нелинейности типа насыщение (пунктир)

рассмотрены процессы нелинейного взаимодействия, аналогичные возникающим при насыщении двухуровневых переходов и при колебаниях ангармонического осциллятора, а также биэкситонный механизм нелинейности. Основные уравнения, описывающие динамику фотонной моды и диэлектрической поляризации экситона в квантовой яме, решены в режиме сильной экситон-фотонной связи для коротких световых импульсов. Проанализировано влияние на осцилляции Раби (как в разрешенном во времени, так и в интегральном нелинейных сигналах) величины задержки между импульсами, темпов затухания и расстройки частот фотонной моды и экситонного резонанса. Для первых двух типов нелинейностей сигнал четырехволнового смешивания состоит из монотонной и осциллирующей компонент, убывающих экспоненциально с показателем, определяемым суммой фотонного и экситонного затуханий. Для биэкситонной нелинейности осцилляции включают затухающие обертоны  $2\Omega$  и  $\delta_{bi}$ .

Авторы выражают благодарность Шведской королевской академии наук (the Royal Swedish Academy of Science) за поддержку. Работа Е.Л.И. и А.А.К. была также частично поддержана грантом INTAS 93-3657.

1. C.Weisbuch, M.Nishioka, A.Ishikawa, and Y.Arakawa, Phys. Rev. Lett. **69**, 3314 (1992).
2. V.Savona, L.C.Andreani, P.Schwedimann, and A.Quattropiani, Solid State Commun. **93**, 733 (1995).
3. S.Pau, G.Björk, J.Jacobson, H.Cao, and Y.Yamamoto, Phys. Rev. B **51**, 7090, 14 437 (1995).
4. A.A.Kavokin and M.A.Kaliteevski, Solid State Commun. **95**, 859 (1995); E.L.Ivchenko, M.A.Kaliteevski, A.V.Kavokin, and A.I.Nesvizhskii, J. Opt. Soc. Am. B **13**, 1061 (1996).
5. L.Schultheis, A.Honold, J.Kuhl et al., Phys. Rev. B **34**, 9027 (1986).
6. M.Wegener, D.S.Chemla, S.Schmitt-Rink, and W.Schäfer, Phys. Rev. A **42**, 5675 (1990).
7. S.Schmitt-Rink, S.Mukamel, K.Leo et al., Phys. Rev. A **44**, 2124 (1991).
8. S.Bar-Ad, I.Bar-Joseph, G.Finkelstein, and Y.Levinson, Phys. Rev. B **50**, 18375 (1994).
9. A.Schulze, A.Knorr, and S.W.Koch, Phys. Rev. B **51**, 10601 (1995).
10. M.Hübner, J.Kuhl, T.Stroucken et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 4199 (1996).
11. H.Wang, J.Shah, T.C.Damen, and L.N.Pfeiffer, Solid State Commun. **91**, 869 (1994).
12. D.Birkedal, J.Singh, V.G.Lyssenko et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 672 (1996).