Задержка и искажение импульсов света вблизи экситонных резонансов в широкозонных полупроводниках

Т.В.Шубина

Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург, Россия

Явление переноса электромагнитного излучения и изменение групповой скорости в среде с оптической дисперсией привлекают внимание исследователей со времен классических работ Зоммерфельда и Бриллюэна, опубликованных более века назад [1]. Современный интерес к «медленному свету» обусловлен тем, что реализация полностью оптических схем квантовых устройств обработки информации зачастую требует передачи оптических импульсов с малой скоростью [2]. Наиболее впечатляющие результаты по задержке света были получены в атомных газообразных системах и кристаллах с центрами окраски [3] с использованием квантовых когерентных эффектов, к примеру, самоиндуцированной прозрачности [4], когда формируется узкое спектральное окно, где практически отсутствует поглощение. Ширина окна определяет длительность импульса T_0 , которая неизбежно велика. Отношение времени задержки T к T_0 имеет предел $\tau = T/T_0 \sim 4$, что ограничивает приборное применение. В полупроводниковых материалах, обладающих сильной оптической дисперсией около резонансных линий свободных и связанных экситонов [5-11], в принципе, нет ограничения на получение большого отношения т. Отрицательной стороной их применения является сильное ослабление сигнала вблизи линий поглощения. Исследование замедления света в области экситонных резонансов в полупроводниках, помимо перспективных применений, важно для работы ряда оптоэлектронных приборов — высокочастотных или тех, где свет должен проходить достаточно длинный путь. Частотные и пороговые характеристики таких приборов зависят также от механизма переноса излучения, который может быть баллистическим поляритонным [3] или диффузионным [12].

Первые работы по анализу прохождения импульса света с центральной частотой, близкой к частоте резонансной линии поглощения в среде, предсказывали слабое изменение формы импульса для значительных длин прохождения [13]. Это согласовывалось с результатами экспериментальных исследований GaAs и GaP:N [5,6], выполненных с применением так называемой «crosscorrelation technique» — методики, позволяющей регистрировать задержку и изменение интенсивности сигнала при различной отстройке от экситонного резонанса. Однако реальные импульсы, имеющие определенную спектральную ширину, должны искажаться на плоскости энергия-время вследствие различной групповой скорости и различного ослабления для верхне- и нижнеэнергетических фронтов [14]. Времяпролетная спектроскопия, при которой лазерный импульс, падающий на одну поверхность кристалла, регистрируется с другой стороны образца, является уникальным методом для наблюдения подобных эффектов [7]. По сути, эта методика является измерением пропускания с достаточно высоким (15–20 пс) временным разрешением. Перестройка длины волны излучения пикосекундного или фемтосекундного лазеров позволяет изучать спектральные зависимости задержки и изменения формы лазерного импульса в окрестности экситонных резонансов.

Методом времяпролетной спектроскопии было исследовано прохождение света через совершенные кристаллы GaN и ZnO толщиной 0.3 - 2 мм. Эти широкозонные гексагональные полупроводники обладают, наряду с сильными экситон-поляритонными резонансами, линиями экситонов, связанных на нейтральных и ионизованных донорах. При энергии импульса выше свободного А экситона вблизи поверхности кристаллов возбуждалась фотолюминесценция (ФЛ), вид которой на плоскости энергия-время также изменялся при прохождении через образец (Рис. 1). В GaN существуют две близко расположенные линии экситона А, связанного на нейтральных донорах (ВХ). Эти линии настолько сильны, что свет полностью поглощаются в их окрестности при толщине образца ~ 1 мм. Изгиб прошедшего сигнала к линиям BX определяется нарастающей задержкой сигнала, максимальная величина которой ~ 500 пс на 1 мм длины соответствует скорости света ~ 2100 км/с ($\sim 0.7\%$ от скорости света в вакууме).

При возбуждении ниже линий ВХ в области относительной прозрачности возможно наблюдение развертки во времени интерференции Фабри–Перо. Рефлексы импульса, отраженные от граней образца, соответствуют чисто баллистическому прохождению света, поскольку при диффузии фотон теряет память о первоначальном направлении после нескольких актов рассеяния. Величина задержки на единицу длины при распространении рефлексов не совпадает с временем задержки на пролет. Разница определяется вкладом в перенос излучения в последнем случае диффузии фотонов, возникающей вследствие резонансного рассеяния на экситон-донорных комплексах. Это было подтверждено измерениями угловых зависимостей интенсивности прошедшего света, которые обнаружили узкие (баллистические) и широкие (диффузионные) компоненты. Таким образом, задержка света в окрестности экситонных резонансов в GaN обусловлена не только дисперсией среды и связанной с этим изменением групповой скорости, но и диффузией фотонов [7]. В условиях



Рис. 1. Изображения ФЛ 1-мм образца GaN, зарегистрированные в обычной (а) и пролетной (b) геометриях измерений, схематически показанных на вставках. Обозначения: А, В — свободные А и В экситоны; ВХ — экситон, связанный на нейтральном доноре, ABX — экситон, связанный на нейтральном акцепторе; ΔT — задержка сигнала.

сильного поглощения вблизи резонансов диффузионный механизм характеризуется линейной зависимостью задержки от длины образца, т.е. такой же, как и при баллистическом прохождении, что объясняется «выживанием» только тех фотонов, траектория движения которых близка к прямолинейной.

Моделирование спектральных зависимостей задержки баллистических рефлексов с учетом неоднородного уширения резонансов совместно со спектрами сw поглощения показало, что сила осциллятора А экситона $f_A = 0.0022$ на 20–30% меньше величины, используемой до настоящего времени [15]. Сила осциллятора связанного экситона $f_{BX} \sim 10^{-4} - 10^{-5}$ была определена с учетом концентрации доноров, задающей нормировочный объем. Сопоставление спектров чисто баллистической задержки рефлексов и задержки света на пролет позволило оценить параметры диффузии фотонов. Коэффициент диффузии $D(\omega)$ равен $0.5 \pm 0.2 \times 10^6$ см²/с при 3.470 эВ; он увеличивается на порядок величины при приближении к 3.460 эВ. Длина свободного пробега фотонов, соответственно, изменяется от 1 до 25 μ м в этих пределах.

При исследовании прохождения света через кристаллы ZnO [16] было обнаружено, что изменение формы лазерного импульса и его задержка (до 1.5 нс в образце толщиной 0.3 мм) в целом определяются резонансами свободных экситонов (Рис. 2). Пикосекундный импульс (спектральная ширина 1–1.5 мэВ), первоначально имеющий гауссову форму, вытягивается и изгибается в координатах энергия-время вследствие различных групповых скоростей верхнеи нижне-энергетических фронтов. Разница во временах задержки фронтов вблизи резонансов А-экситонной серии достигает 1 нс. При этом положение



Рис. 2. Последовательность пс импульсов, прошедших через кристалл ZnO толщиной 0.3 мм. Изображения отдельных импульсов разделены белыми линиями. Энергия центра падающих импульсов указана сверху. В области относительной прозрачности зарегистрированы реплики импульса, отраженного от границ кристалла, соответствующие трехкратной (3L) и пятикратной (5L) длине прохождения света. Пунктирная кривая — расчетная спектральная зависимость времени задержки с учетом только экситон-поляритонных резонансов.

«центра тяжести» (максимума интенсивности) смещается в сторону низких энергий вследствие нарастающего поглощения. На частотах, соответствующих пикам резонансов связанных экситонов, наблюдались провалы вплоть до полного гашения сигнала при локальном увеличении задержки по контуру линий. Достаточная толщина образцов позволила выявить даже слабые линии в поглощении, число которых (~ 18) более чем в два раза превысило наблюдаемое в спектрах ФЛ.

Моделирование формы импульсов на плоскости энергия-время проводилось на основе преобразования Габора с учетом многократных отражений от границ кристалла. При этом амплитуда и фаза импульса в частотном представлении получались Фурье преобразованием на границе среды [16]. Уширение, вызванное конечным временем прохождения оптического сигнала в регистрирующей системе, учитывалось путем использования временного окна шириной 15 пс. В результате моделирования было определено, что однородная ширина экситон-поляритонных резонансов при низкой температуре в ZnO крайне мала — 3 μ эВ (в GaN — 10 μ эВ). Продольно-поперечное расщепление для А-экситонной серии составляет 3 мэВ. Найденные величины характеризуют объем материала. Они отличаются от данных, полученных методами, пробующими поверхность образцов (отражение и фотолюминесценция). Мо-

делирование показало также, что сила осциллятора связанных экситонов в ZnO невелика ($< 5.10^{-6}$), что определяет малое сечение рассеяния фотонов и отсутствие заметной диффузионной составляющей.

Таким образом, перенос излучения в области экситонных резонансов в ZnO и GaN сопровождается не только задержкой, но и резким искажением формы импульсов света. Моделирование этого явления позволило уточнить ряд параметров полупроводников. Результаты исследования представляются важными для создания оптоэлектронных приборов и деталей полностью оптических схем.

Литература

- [1] L. Brillouin, Wave Propagation and Group Velocity (Academic, New York, 1960).
- [2] D. S. Wiersma, *Nature* **452**, 942 (2008).
- [3] L. V. Hau et al., Nature **397**, 594 (1999).
- [4] H. Schmidt and A. Imamoglu, Opt. Lett. 21, 1936 (1996).
- [5] R. G. Ulbrich and G. W. Fehrenbach, *Phys. Rev. Lett.* 43, 963 (1979).
- [6] S. Chu and S. Wong, *Phys. Rev. Lett.* 48, 738 (1982).
- [7] T. V. Shubina et. al., Phys. Rev. Lett. 100, 087402 (2008).
- [8] Н. А. Видмонт и др. Письма в ЖЭТФ 37, 578 (1983).
- [9] G. Xiong et al., J. Phys.: Condens. Matter 17, 7287 (2005).
- [10] T. Godde, I. A. Akimov, D. R. Yakovlev, et al., Phys. Rev. B 82, 115332 (2010).
- [11] S.L. Chen et al., Phys. Rev. B. 84, 245212 (2011).
- [12] M. P. van Albada and A. Lagendijk, Phys. Rev. Lett. 55, 2692 (1985).
- [13] C. G. B. Garrett and D. E. McCumber, *Phys. Rev. A* 1, 305 (1970).
- [14] Л. А. Вайнштейн, УФН 118, 339 (1976).
- [15] T. V. Shubina et al., Appl. Phys. Lett. 99, 101108 (2011).
- [16] T. V. Shubina et al., Phys. Rev. B 84, 075202 (2011).