### САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

На правах рукописи

Соловьев Иван Александрович

## КОГЕРЕНТНАЯ ОПТИЧЕСКАЯ ДИНАМИКА ЭКСИТОНОВ И ТРИОНОВ В ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ КВАНТОВЫХ ЯМАХ

Научная специальность 1.3.8. Физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

> Научный руководитель: профессор д. ф.-м. н. Югова Ирина Анатольевна

Санкт-Петербург – 2023

## Оглавление

Глава	1. Co	овременное состояние сверхбыстрой спектроскопии		
экс	итоно	в в полупроводниковых наноструктурах	16	
1.1	Эксит	гонные состояния в полупроводниковых наноструктурах	16	
1.2	Особенности спектроскопических методов исследования			
	экситонов в наноструктурах			
	1.2.1	Нерезонансная фотолюминесценция	18	
	1.2.2	Резонансная фотолюминесценция	21	
	1.2.3	Спектроскопия отражения	23	
	1.2.4	Метод накачки-зондирования в спектроскопии отражения	26	
1.3	Четырехволновое смешение и фотонное эхо			
	1.3.1	Релаксационные процессы, наблюдаемые в		
		четырехволновом смешении и фотонном эхе	31	
	1.3.2	Спин-зависимое фотонное эхо	36	
1.4	Выво,	ды и задачи работы	40	
Глава	2 Tec	ретические и экспериментальные полуолы для		
исс	лелова	ания фотонного эха от экситонов в наноструктурах.	41	
2.1	Teope	Теоретическое описание фотонного эха от ансамбля		
	2.1.1	Динамика ансамбля двухуровневых систем во внешнем		
		электромагнитном поле	42	
	2.1.2	Действие ультракороткого лазерного импульса	45	
	2.1.3	Свободная прецессия	46	
	2.1.4	Протокол фотонного эха	47	
2.2	Тонка	ая структура экситонов, трионов и правила отбора	50	
2.3	2.3 Спиновые эффекты в фотонном эхе		53	
2.4	Детектирование пикосекундного фотонного эха с временным			
	разре	шением	54	
Глава	3. Фо	тонное эхо от экситонов и трионов в квантовой яме		
ZnO	D/(Zn,	Mg)O	61	
3.1	Введе	ение к главе	61	

3.2	Исследуемый образец	62
3.3	Характеризация образца	63
3.4	Фотонное эхо со спектральным разрешением	64
3.5	Температурные измерения когерентной динамики	69
3.6	Анализ экспериментальных результатов	71
3.7	Выводы	72
Глава	4. Долгоживущее фотонное эхо от экситонов в	
пер	риодической структуре с квантовыми ямами (In,Ga)N/GaN	74
4.1	Введение к главе	74
4.2	Исследуемый образец	75
4.3	Характеризация структуры	76
4.4	Фотонное эхо со спектральным разрешением	76
4.5	Температурные измерения фотонного эха	81
4.6	Анализ результатов	83
4.7	Выводы	85
Глава	5. Спин-зависимое фотонное эхо от экситонов в квантовой	
ЯМС	е (In,Ga)As/GaAs в поперечном магнитном поле	87
5.1	Введение к главе	87
5.2	Исследуемый образец	89
5.3	Линейная спектроскопия образца	89
5.4	Фотонное эхо от экситонов в квантовой яме (In,Ga)As/GaAs	92
	5.4.1 Нулевое магнитное поле	93
	5.4.2 Фотонное эхо при приложении поперечного магнитного поля	95
5.5	Модель экситонного ансамбля в квантовой яме в поперечном	
	магнитном поле	96
5.6	Анализ экспериментальных результатов	99
5.7	Апериодический режим осцилляций	102
5.8	Ларморовская прецессия в сигнале фотонного эха	108
5.9	Выводы	110
Заклю	очение	12
Прило	ожение А. Дополнительные теоретические аспекты	115
A.1	Формализм матрицы плотности	115

#### Введение

#### Актуальность темы

История исследования экситонных эффектов началась еще в 30-х годах XX века, когда Я. Френкель впервые предложил гипотезу о существовании экситонов как квантов возбуждения по аналогии с фононами [1, 2]. В дальнейшем сильно локализованные экситоны, имеющие характерный размер порядка размера атома и наблюдаемые в первую очередь в молекулярных кристаллах, будут названы экситонами Френкеля. В кристаллах с большой диэлектрической проницаемостью под экситонами подразумевается связанные Кулоновским взаимодействием электрон-дырочные пары большого радиуса, теория для которых была предложена Ванье [3] и впоследствии развита Моттом [4, 5]. Именно такие квазичастицы, получившие название экситонов Ванье-Мотта, наблюдаются в полупроводниковых кристаллах, например, в арсениде галлия или оксиде цинка. Экспериментальное наблюдение экситонов в закиси меди Cu<sub>2</sub>O было впервые проведено Е. Гроссом в начале 50-х годов прошлого столетия [6].

Несмотря на тот факт, что основы физики экситонов были рассмотрены более 50 лет назад, данная тематика является крайне актуальной и в настоящее время. Технологический прогресс в области создания полупроводников привел к появлению принципиально новых объектов - полупроводниковых гетероструктур, характерные размеры которых имеют нанометровый масштаб. В отличие от объемных материалов оптические свойства таких объектов, как квантовые ямы (КЯ), квантовые нити и квантовые точки (КТ) в основном определяются экситонными эффектами в силу увеличения перекрытия волновых функций электрона и дырки в экситоне [7, 8]. При этом манипулируя процентным составом слоев гетероструктур и их характерными размерами, можно задавать желаемые параметры экситонов [9]. Таким образом изучение резонансных экситонных особенностей стало играть главную роль в спектроскопии наноструктур [10].

Параллельно с ростом качества выращиваемых эпитаксиальных структур бурно развивалась фемто- и пикосекундная лазерная техника, позволяющая достигать исключительно высоких величин мгновенной интенсивности электромагнитного поля [11, 12]. Большие интенсивности лазерных импульсов вкупе с резонансной структурой экситонных спектров позволили преодолеть проблему малых коэффициентов нелинейной восприимчивости и пронаблюдать различные нелинейные оптические эффекты [13—17]. Эти достижения в конечном счете открыли путь новому направлению в физике экситонов в конце XX века - изучению нелинейной оптической динамики на сверхкоротких временных масштабах [18].

Ярким примером нелинейного оптического эффекта является четырехволновое смешение (ЧВС). Одним из первых это явление рассмотрел Армстронг и соавторы [19]. Суть эффекта состоит в том, что при возбуждении нелинейной среды тремя электромагнитными волнами в результате перекрестного взаимодействия возникает четвертая волна, волновой вектор и частота которой не совпадают с таковыми возбуждающих волн в общем случае [10, 18, 20]. В ходе развития исследований ЧВС свое новое применение нашла методика наблюдения спинового эха от неоднородного ансамбля спинов, использованная ранее в области ядерного магнитного резонанса. Оказалось, что в оптической спектроскопии возможно реализовать аналогичный эффект для фотонного эха  $(\Phi \Theta)$ , предсказанного Копвиллем и Нагибаровым [21] и продемонстрированного затем Хартманном [22]. На сегодняшний день импульсное ЧВС и, в частности, ФЭ являются мощными инструментами изучения фундаментальных особенностей нелинейного взаимодействия света с полупроводниковыми наноструктурами, позволяющими наблюдать когерентную оптическую динамику экситонов на временах от сотен фемтосекунд до единиц наносекунд [18, 23, 24].

С самого начала фундаментальных исследований ЧВС возник особый интерес к возможностям прикладного применения результатов. В качестве примера можно привести обращение волнового фронта и создание фазообращающих зеркал [25—28], варианты прототипов оптических логических элементов [29] и ячеек оптической памяти [30—35]. На сегодняшний день актуальной задачей современной экспериментальной физики является поиск новых материальных платформ для создания элементов квантовых вычислений [36]. Благодаря развитию нелинейной оптики полупроводников, а именно реализации когерентного оптического контроля, и совершенствованию технологий роста наноструктур удалось создать системы на основе КТ, удовлетворяющих требованиям к кандидатам на роль кубита [37—39]. Фундаментальная проблема любых кубитных платформ - потеря когерентности системы [40]. В этом контексте нестационарное ЧВС является крайне полезным инструментом для изучения механизмов дефазировки экситонов в наноструктурах, что говорит о высокой степени актуальности таких исследований.

Кратко рассмотрев исторический ход развития нелинейной оптики полупроводников, мы приходим к выводу, что одинаково важны оба пути развития науки: как экстенсивный - с расширением набора знаний о различных новых материальных системах, так и интенсивный - с углублением в понимании фундаментальных процессов, наблюдаемых в ставшими уже классическими системах. Нередко последнее приводит к обнаружению новых тонких эффектов. Настоящая работа содержит в себе обе компоненты, что указывает как на актуальность исследований, так и на их полноту. Главы 3 и 4 посвящены применению техники вырожденного ЧВС для исследования новых широкозонных полупроводниковых структур с КЯ на основе ZnO и InGaN, когерентные свойства которых мало изучены на сегодняшний день.

Рассматривать потенциальные реализации каких-либо протоколов когерентного контроля целесообразно после формирования фундаментального понимания характера процессов, проходящих при взаимодействии со светом. Только при наличии прогнозируемости отклика системы, можно рассуждать о поисках прикладного использования знаний. Поэтому для исследования динамики спин-зависимого ФЭ мы специально используем достаточно изученную системы с КЯ (In,Ga)As/GaAs высочайшего качества, отклик которой предсказуем. Таким образом, заключительная глава посвящена развитию методики спинзависимого когерентного оптического управления экситонными состояниями в модельной системе на основе GaAs.

В своей работе мы используем протокол, в котором совмещаются когерентная оптическая динамика экситонов со спиновой прецессией электрона и дырки в экситоне, индуцированной внешним магнитным полем. При изучении природы такой комплексной спиновой и оптической динамики экситонов в модельной структуре, появляется возможность применить разработанные методики к новым объектам, таким как широкозонные KЯ на основе ZnO и InGaN, дихалькогениды переходных металлов или перовскиты.

#### Цель и задачи

Целью настоящей работы является развитие возможностей когерентного управления экситонами и их заряженными комплексами в полупроводниковых

7

наноструктурах. Развитие предлагается в двух плоскостях - приложение метода фотонного эха к изучению характера сверхбыстрой когерентной динамики в перспективных новых полупроводниковых низкоразмерных структурах, а также развитие протоколов когерентного оптического контроля экситонов на основе метода спин-зависимого фотонного эха. Достижение поставленной цели потребовало решения следующих задач:

- Создание экспериментальной установки для детектирования сигнала фотонного эха от полупроводниковых наноструктур с пикосекундным временным разрешением при температурах жидкого гелия, со спектральным разрешением порядка 1 мэВ и с возможностью варьирования таких степеней свободы, как температура образца, поляриметрическая конфигурация возбуждения и детектирования, интенсивность возбуждающих импульсов, а также с возможностью приложения внешнего магнитного поля амплитудой до 6 Т.
- Экспериментальное обнаружение сигнала ЧВС в форме двухимпульсного первичного и трехимпульсного стимулированного фотонного эха при селективном возбуждении неоднородно уширенных ансамблей нейтральных экситонов и их заряженных комплексов в КЯ ZnO/(Zn,Mg)O, (In,Ga)N/GaN и (In,Ga)As/GaAs в ультрафиолетовом и инфракрасном спектральном диапазоне. Проведение спектральных, поляриметрических, температурных и мощностных измерений сигнала ФЭ.
- Определение влияния экспериментальных условий на оптическую дефазировку и энергетическую релаксацию экситонов и их комплексов. Анализ полученных экспериментальных данных и сравнение результатов с теоретически ожидаемым поведением системы, а также с результатами, представленными в литературе.
- Экспериментальное обнаружение проявления Ларморовской прецессии электронного и дырочного спина в сигнале спин-зависимого фотонного эха от ансамбля экситонов при приложении поперечного магнитного поля структуре с КЯ (In,Ga)As/GaAs. Исследование зависимости сигнала от величины приложенного магнитного поля и поляризационной конфигурации возбуждения-детектирования.

- Анализ экспериментальных результатов с использованием модели пятиуровневой экситонной системы, взаимодействующей со светом в поперечном магнитном поле с учетом разных скоростей дефазировки для оптически светлых и темных экситонов.
- Экспериментальная проверка наличия как периодического режима осцилляций, так и апериодического поведения кинетики затухания сигнала спинзависимого фотонного эха, предсказанных теоретической моделью.

#### Метод научного исследования

Основополагающий экспериментальный метод исследований работы нестационарное четырехволновое смешение с временным разрешением. Метод позволяет детектировать сверхбыструю оптическую когерентную динамику экситонных возбуждений в пикосекундном временном масштабе. При использовании двух- и трехимпульсной схем возбуждения метод дает возможность определить фундаментальные характеристики изучаемых систем - скорость энергетической релаксации и скорость обратимой и необратимой фазовой релаксации. Преимуществом метода является возможность разделить вклады различных механизмов, приводящих к фазовой и энергетической релаксации. Использование узкоспектральной пикосекундной техники позволяет изолированно исследовать интересующий ансамбль квазичастиц, не возбуждая параллельно другие квазичастицы, оптические переходы которых близко расположены в спектральной области. Кроме того, мгновенная мощность в пикосекундном импульсе многократно меньше, чем в традиционно используемом фемтосекундном импульсе. Этот факт снижает влияние паразитных многочастичных взаимодействий, приводящих к эффекту дефазировки, индуцированной возбуждением.

#### Научная новизна

Все научные результаты, представленные в диссертации, являются новыми.

Техника пикосекундного фотонного эха не применялась до настоящего момента для исследования когерентных оптических свойств экситонов и трионов в структурах с квантовыми ямами ZnO/(Zn,Mg)O. Это обусловлено тем, что только в последнее время удалось добиться относительно высокого качества роста данных структур [41, 42]. Благодаря использованию узкоспектральной пикосекундной техники впервые были определены спектральные зависимости времен фазовой и энергетической релаксации ансамблей экситонов и трионов двух типов A и B. Оригинальные измерения позволили разделить вклады различных механизмов в фазовую и энергетическую релаксацию упомянутых ансамблей.

Представленные исследования когерентной оптической динамики локализованных экситонов в периодической структуре с квантовыми ямами (In,Ga)N/GaN, наблюдаемой в диапазоне сотен пикосекунд, являются первыми измерениями такого рода. На сегодняшний день в литературе имеется лишь несколько работ, посвященных когерентным оптическим свойствам экситонов в наноструктурах на основе GaN. Однако, во всех работах характерные времена сохранения оптической когерентности составляли лишь доли пикосекунд.

В работе показана первая экспериментальная реализация протокола спинзависимого двухимпульсного фотонного эха на системе экситонов в квантовой яме (In,Ga)As/GaAs. Исследования подтвердили теоретически предсказанное осциллирующее поведение кинетики затухания амплитуды фотонного эха при приложении поперечного магнитного поля. Экспериментально был обнаружен особый апериодический режим поведения сигнала, проявляющий время фазовой релаксации темных экситонов. Метод позволил пронаблюдать ларморовскую прецессию спина тяжелой дырки в экситоне и определить соответствующий g-фактор в диапазоне магнитных полей 0-6 T, а также получить информацию об электронном g-факторе, оценить величину неоднородного разброса дырочного g-фактора и константу обменного взаимодействия  $\delta_0$ .

#### Теоретическая и практическая значимость работы

В первую очередь представленная работа имеет фундаментальный характер. Основная ее цель - получение основополагающих знаний о когерентной оптической динамике экситонов и их комплексов в полупроводниковых КЯ ZnO/(Zn,Mg)O, (In,Ga)N/GaN и (In,Ga)As/GaAs. Получение знаний об энергетической структуре исследуемых ансамблей, характере взаимодействия со светом, основных механизмах дефазировки и энергетической релаксации, поведении системы при приложении магнитного поля представляет фундаментальную научную значимость настоящей работы. Полученные новые знания могут быть включены в курсы лекций для студентов университетов. Кроме этого, с точки зрения практической значимости можно привести развитие экспериментальной методики спин-зависимого фотонного эха с пикосекундным временным разрешением. Добавление различных степеней свободы в экспериментальную установку позволяет контролировать большее количество параметров и пронаблюдать ранее не детектируемые эффекты.

#### Основные положения, выносимые на защиту

- Монотонное увеличение скоростей энергетической релаксации Γ<sub>1</sub> и чистой фазовой релаксации Γ<sub>c</sub> трионов типа A в квантовых ямах ZnO/(Zn,Mg)O с ростом энергии при низких температурах является следствием локализации квазичастиц на флуктуациях потенциала квантовой ямы. Причиной изменения Γ<sub>1</sub> служит безызлучательная релаксация трионов внутри случайного потенциального рельефа с испусканием фононов. Упругое рассеяние движущихся трионов на флуктуациях потенциала ямы приводит к росту Γ<sub>c</sub> по мере уменьшения степени локализации.
- Экситоны в квантовых ямах (In,Ga)N/GaN испытывают сильную локализацию внутри существенно неоднородного потенциала ямы, близкого по структуре к массиву квантовых точек. Локализация приводит к увеличению времен фазовой и энергетической релаксации экситонов.
- Осцилляции сигнала двухимпульсного фотонного эха в квантовой яме InGaAs/GaAs при приложении внешнего магнитного поля обусловлены Ларморовской прецессией экситонных спинов.
- Смешивание светлых и темных экситонов в квантовой яме (In,Ga)As/GaAs под действием внешнего магнитного поля приводит к увеличению времени фазовой релаксации экситонной системы. В режиме апериодического поведения сигнала спин-зависимого фотонного эха время фазовой релаксации стремится к времени фазовой релаксации темных долгоживущих экситонов.

#### Степень достоверности и апробация результатов

Согласованность теоретического моделирования с экспериментальными результатами, а также соответствие между приведенными выводами и опубли-

кованными раннее работами обеспечивают достоверность результатов. Оригинальные научные результаты настоящей работы были представлены на следующих международных научных конференциях:

- I. A. Solovev, S. V. Poltavtsev, Yu. V. Kapitonov, I. A. Akimov, S. Sadofev, J. Puls, D. R. Yakovlev, and M. Bayer, Time-resolved photon echoes from excitons and trions in ZnO/ZnMgO quantum wells International conference on the physics of semiconductors (ICPS) July 29 - August 3 2018, Montpellier, France (the best poster)
- 2. I. A. Solovev, Yu. V. Kapitonov, I. A. Yugova, S. A. Eliseev, Yu. P. Efimov, V. A. Lovcjus and S. V. Poltavtsev, Magnetic field-dependent photon echo from excitons in InGaAs/GaAs quantum wells International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems, September 16-20 2019, Saint Petersburg, Russia
- 3. I. A. Solovev, I. I. Yanibekov, Yu. V. Kapitonov, Ia. A. Babenko, V. A. Lovcjus, S. A. Eliseev, Yu. P. Efimov, I. A. Yugova, and S.V. Poltavtsev, Accessing dark excitons in InGaAs/GaAs quantum well via spin-dependent photon echo, International conference on physics of light-matter coupling in nanostructures, October 27-30 2020, Clermont-Ferrand, France (online).
- 4. И. А. Соловьев, Ю. В. Капитонов, И. А. Югова, С.А. Елисеев, Ю. П. Ефимов, В. А. Ловцюс и С. В. Полтавцев, Обнаружение когерентной динамики темных экситонов в квантовой яме InGaAs/GaAs с помощью спинзависимого фотонного эха, Международный симпозиум по фотонному эхо и когерентной спектроскопии (ФЭКС-2021), 25-30 Октября 2021, Казань, Россия (лауреат конкурса научных работ молодых ученых).

Результаты были также представлены на трех научных семинарах лаборатории оптики спина им. И. Н. Уральцева СПбГУ.

#### Личный вклад

Автор диссертации самостоятельно проводил экспериментальные измерения, приведенные в работе, осуществлял обработку и анализ полученных данных. Для проведения исследований в РЦ Нанофотоника СПбГУ автором самостоятельно была реализована экспериментальная установка для измерения двух- и трехимпульсного спин-зависимого фотонного эха с пикосекундным временным разрешением. Автор принимал активное участие в постановке научных задач, интерпретации результатов и подготовке научных публикаций.

#### Публикации

Основные результаты по теме диссертации опубликованы в 5 печатных изданиях, 4 из которых опубликованы в научных журналах первого квартиля Q1. Все статьи индексируются в базах данных Scopus, Web of Science и РИНЦ. Список публикаций автора по теме диссертации:

- I. A. Solovev, I. I. Yanibekov, I. A. Babenko, B. V. Stroganov, S. A. Eliseev, V. A. Lovcjus, Yu. P. Efimov, S. V. Poltavtsev, Yu. V. Kapitonov, I. A. Yugova "Manipulation of optical coherence of quantum-well excitons by transverse magnetic field", Physical Review B, **106** 115401 (2022)
- I. A. Solovev, I. I. Yanibekov, Yu. P. Efimov, S. A. Eliseev, V. A. Lovcjus, I. A. Yugova, S. V. Poltavtsev, Yu. V. Kapitonov "Long-lived dark coherence brought to light by magnetic-field controlled photon echo", Physical Review B 103 235312 (2021)
- I. A. Solovev, Yu. V. Kapitonov, B. V. Stroganov, Y. P. Efimov, S. A. Eliseev, S. V. Poltavtsev "Separation of inhomogeneous and homogeneous broadening manifestations in InGaAs/GaAs quantum wells by time-resolved four-wave mixing", Journal of Physics: Conference Series, **1124**, 051042 (2018)
- 4. S. V. Poltavtsev, I. A. Solovev, I. A. Akimov, V. V. Chaldyshev, W. V. Lundin, A. V. Sakharov, A. F. Tsatsulnikov, D. R. Yakovlev, M. Bayer "Long coherent dynamics of localized excitons in (In,Ga)N/GaN quantum wells", Physical Review B 98, 195315 (2018)
- 5. I. A. Solovev, S. V. Poltavtsev, Yu. V. Kapitonov, I. A. Akimov, S. Sadofev, J. Puls, D. R. Yakovlev, M. Bayer "Coherent dynamics of localized excitons and trions in ZnO/(Zn,Mg)O quantum wells studied by photon echoes", Physical Review B 97, 245406 (2018).

Автор имеет еще 8 публикаций, не относящихся к теме диссертации.

#### Объем и структура работы

Диссертация состоит из введения, пяти глав и заключения.

Первая глава дает представление об экситонных состояниях в полупроводниковых наноструктурах и содержит обзор литературы по исследованиям сверхбыстрой динамики экситонов. В главе приведен анализ проявления механизмов релаксации экситонов в различных экспериментальных методиках, особое внимание уделено специфике работ по нестационарному четырехволновому смешению и фотонному эху.

Во второй главе описаны теоретические и экспериментальные подходы, используемые для исследования фотонного эха. Первая часть главы содержит описание теоретического аппарата, необходимого для анализа сигнала фотонного эха от экситонного ансамбля в квантовых ямах. Вторая часть главы посвящена подробному описанию экспериментальной установки, созданной для измерения пикосекундного фотонного эха, с описанием особенностей детектирования сигнала с временным разрешением.

В третьей главе представлены оригинальные результаты экспериментального исследования когерентной оптической динамики экситонов и трионов в квантовых ямах ZnO/(Zn,Mg)O. В главе приведены краткое введение, описание образца, оригинальные результаты линейной спектроскопии и измерений сигнала двух- и трехимпульсного фотонного эха в спектральной области экситонных и трионных переходов, температурные исследования когерентной динамики с анализом полученных результатов.

В четвертой главе изложены результаты применения методики фотонного эха для исследования когерентной оптической динамики экситонов в периодической структуре с КЯ (In,Ga)N/GaN в пикосекундном временном масштабе. Глава содержит введение, описание исследуемого образца, результаты оригинальных исследований по спектроскопии двух- и трехимпульсного фотонного эха от экситонов при различной температуре и анализ полученных результатов.

Пятая глава посвящена развитию протоколов когерентного контроля экситонов, а именно экспериментальной реализации протокола спин-зависимого фотонного эха в квантовой яме (In,Ga)As/GaAs при приложении внешнего поперечного магнитного поля. Глава содержит краткое введение, описание исследуемого образца, оригинальные результаты линейной спектроскопии экситонов и исследования когерентной оптической динамики экситонов методом двухимпульсного спин-зависимого фотонного эха. В главе приведен анализ теоретической модели, используемой для объяснения наблюдаемого осциллирующего поведения сигнала эха. Подробно рассмотрены особенности модели в сравнении с экспериментальными данными.

В заключении представлены результаты работы.

## Глава 1. Современное состояние сверхбыстрой спектроскопии экситонов в полупроводниковых наноструктурах

Глава посвящена обзору литературы по экспериментальному исследованию сверхбыстрой спектроскопии экситонов в полупроводниковых наноструктурах. Глава содержит описание экситонных состояний и обзор исследований экситонной динамики различными экспериментальными методиками с анализом их особенностей. Отдельное внимание уделено обзору работ по изучению когерентной оптической динамики экситонов методами четырехволнового смешения и фотонного эха. В конце главы приведен анализ недавно опубликованных работ по теме спин-зависимого фотонного эха.

## 1.1 Экситонные состояния в полупроводниковых наноструктурах

В последние годы фокус исследований полупроводников сместился от объемных материалов в сторону изучения низкоразмерных наноструктур. Искусственно создаваемые объекты отличаются принципиальной возможностью придания желаемых свойств объекту и конструирования структур с требуемыми характеристиками [9]. Низкоразмерные структуры активно используются в широком классе оптоэлектронных устройств - от привычных каждому светодиодов и лазерных указок [43] до квантовых детекторов однофотонного излучения [44]. Особенностям низкоразмерных систем посвящен ряд книг [9, 18, 45-48]. Среди таких систем наиболее простыми являются квантовые ямы. Классический вариант одиночной полупроводниковой КЯ первого типа представляет собой слоистую гетероструктуру, состоящую из полупроводников с разной шириной запрещенной зоны. Тонкий, порядка 10-100 нм, слой одного полупроводника выращивается между относительно толстыми слоями другого полупроводника толщиной 50-200 нм, ширина запрещенной зоны которого больше ширины первого. Разность ширин распределяется между валентной зоной (V-зона) и зоной проводимости (С-зона), образуя потенциальные квантовые ямы для дырки и электрона соответственно, как показано на рисунке 1. В низкоразмерных объектах в процессах взаимодействия со светом ключевую роль играют экситонные



Рис. 1: Схема КЯ I типа и профиль верха валентной зоны и дна зоны проводимости. Ega(Egb) - ширина запрещенной зоны материала A (B),  $\Delta E_{C(V)}$  - величина потенциальной ямы для электрона (дырки); горизонтальными линиями в среднем слое A условно обозначены уровни квантования энергии для электрона и дырки.

эффекты. В объемном кристалле экситон, как связанная кулоновским взаимодействием водородоподобная частица, имеет ридберговскую серию состояний в дополнение к параболической зависимости кинетической энергии экситона как целого [47]:

$$E = E_g - \frac{R_x}{n^2} + \frac{\hbar^2 Q^2}{2M}, \ R_x = \frac{\mu e^4}{32(\pi\hbar\varepsilon\varepsilon_0)^2}, \ M = m_c + m_v, \ \mu = \frac{m_c m_v}{m_c + m_v}, \quad (1)$$

где  $E_g$  - ширина запрещенной зоны кристалла,  $R_x$  - энергия связи экситона, Mи  $\mu$  - общая и приведенные массы экситона, выражаемые через эффективные массы электрона  $m_c$  и дырки  $m_v$ .  $R_x$  для GaAs составляет 4.8 мэB, в то время как для ZnO около 60 мэB. В структурах пониженной размерности (KЯ, KT) ограничение движения носителей заряда приводит к размерному квантованию кинетической энергии электрона в C-зоне и для дырки в V-зоне, что существенно изменяет энергетическую структуру и оптические свойства. Понижение размерности структуры также приводит к качественной модификации функции плотности состояний из корневой зависимости в ступенчатую функцию. Эта особенность вместе с экситонным эффектом проявляется в спектрах поглощения [15, 49]. Для KЯ с конечной высотой барьеров и толщиной, сравнимой с Боровским радиусом трехмерного экситона (для GaAs около 12 нм) и меньше, не существует аналитического решения для стационарных экситонных состояний. Решение существует для строго двумерного случая 2D-экситона [45]:

$$E = E_g - \frac{R_x}{(n-1/2)^2} + \frac{\hbar^2 Q_{\parallel}^2}{2M} + E_{hm} + E_{em}, \qquad (2)$$

где  $E_{hm}$ ,  $E_{em}$  - энергии размерного квантования электрона и дырки. Важно заметить, что для основного 1-s состояния 2D-экситона энергия связи увеличивается в 4 раза, а экситонный радиус уменьшается в 2 раза по сравнению с трехмерным случаем [9]. Эти факторы позволяют наблюдать экситонные эффекты в КЯ при более высоких температурах в отличие от объемных структур [15]. В реальных ямах энергия связи  $E_x$  находится в диапазоне значений между  $R_x$  и  $4R_x$ , и энергии стационарных состояний рассчитываются с помощью различных численных методов [47, 50, 51].

Помимо отличий в энергетической схеме и энергии связи взаимодействие экситонов с электромагнитным полем также испытывает качественные изменения. В наноструктурах появляется возможность прямой излучательной рекомбинации в ввиду неотъемлемого нарушения трансляционной симметрии в отличие от объемного идеального кристалла, в котором стационарными состояниями являются экситонные поляритоны, а для излучательной рекомбинации требуется вовлечение фонона или дефекта в процесс [52—54].

# 1.2 Особенности спектроскопических методов исследования экситонов в наноструктурах

Изучение взаимодействия света с веществом, как правило, начинается с рассмотрения линейного отклика. Линейная оптическая спектроскопия привлекательна своей изящной простотой и при этом предоставляет богатый набор базовой информации о характере взаимодействия. В случае исследования полупроводниковых прямозонных полупроводников основными методиками являются спектроскопия фотолюминесценции (ФЛ) и отражения. Далее кратко рассмотрим работы по исследованию экситонов в наноструктурах упомянутыми методами.

#### 1.2.1 Нерезонансная фотолюминесценция

Суть метода ФЛ заключается в возбуждении структуры светом с энергией фотона выше интересующего спектрального диапазона и наблюдении вторичного свечения структуры. В спектроскопии ФЛ КЯ возбуждение обычно производится выше энергии барьера ямы с помощью лазерного излучения. Детальному рассмотрению метода посвящена монография [55]. При поглощении



Рис. 2: Схема нерезонансного возбуждения электрон-дырочной пары и последующей термализации носителей заряда с образованием экситона. СВ - зона проводимости, VB - валентная зона. Пунктиром изображена величина энергии экситонного перехода  $E_X$  для сравнения с величиной ширины запрещенной зоны, разница между которыми определяется энергией связи экситона.

фотона электрон из валентной зоны совершает оптический переход в состояние в зоне проводимости. Рожденная таким образом электрон-дырочная пара испытывает быструю энергетическую релаксацию в нижайшие по энергии состояния, соответствующие экситонам. В конечном счете при низких температурах (единицы Кельвинов) в спектрах ФЛ преобладают линии нижайших экситонных состояний, так как интенсивность линий в спектрах ФЛ определяется не только силой осциллятора перехода, но и населенностью уровня [55]. Изменение спектрального положения основного экситонного состояния в спектре  $\Phi\Pi$  наглядно показывает, например, температурное сужение запрещенной зоны [56], а также параллельное уширение экситонных резонансов ввиду экситон-фононного рассеяния [57], как показано на рисунке 3. Также методика  $\Phi \Pi$  оказывается крайне полезной при изучении поведения экситонов в магнитном поле и изучении тонкой структуры экситонных уровней [58]. Благодаря тенденции к свечению из нижайших состояний спектры микро-ФЛ, приведенные на рисунке 4, позволяют получить информацию о локализованных состояниях экситонов в яме и тем самым оценить степень неоднородности интерфейсов [59, 60]. Поэтому метод ФЛ часто используется как инструмент для оценки качества роста структур [61—64]. В данной работе мы также будем активно использовать данный метод для первоначальной оптической характеризации образцов.

ФЛ может быть применена не только для получения стационарной спектроскопической картины, но и для детектирования кинетики сверхбыстрых про-



Рис. 3: Спектры ФЛ КЯ GaAs/AlGaAs, измеренные при температуре от 10 до 300 К. На вставке изображена структура образца и схема возбуждения. Взято Из [57]



Рис. 4: Спектры микро-ФЛ образцов с прерыванием роста (А) и без (В) как функция диаметра пятна детектирования. Взято из [59].

цессов релаксации и рекомбинации экситонов. Высокое временное разрешение достигается с помощью использования сверхкоротких лазерных импульсов и либо прямого детектирования быстродействующими фотоприемниками, либо с помощью различных двух-импульсных методик, например, ап-конверсии [18, 65]. Последняя методика была использована в работе Дамэна и соавторов [66]. При нерезонансном возбуждении выше энергии экситонного перехода в высококачественной КЯ кинетика экситонной ФЛ начинается с нарастания сигнала, характерное время которого растет с понижением температуры и достигает сотен пикосекунд при T = 5 К. Время нарастания сигнала определяется скоростью образования излучающих экситонов, а она в свою очередь зависит одновременно от процессов релаксации электрон-дырочных пар с образованием горячих экситонов с последующей термализацией и релаксации энергии и проекции импульса вдоль плоскости ямы. Чтобы разделить эти вклады авторы рассмотрели кинетику уширения экситонной линии, основываясь на факте, что уширение экситонной линии ФЛ из-за столкновений экситонов с носите-

лями заряда много больше, чем уширение, обусловленное экситон-экситонным рассеянием. Кинетика уширения линии ФЛ показала, что основной механизм долгого нарастания ФЛ связан именно с релаксацией импульса неизлучающих экситонов, так как релаксация электрон-дырочных пар происходила в течение 20 пикосекунд после возбуждения. Аналогичные косвенные проявления длительной релаксации неизлучающих экситонов были недавно показаны в работе [67].

Увеличение экситонной плотности способствует ускорению процесса термализации экситонов [68], что было использовано для уменьшения времени нарастания ФЛ [69]. Это также позволило пронаблюдать осциллирующее поведение времени нарастания ФЛ по мере увеличения энергии возбуждения, связанное с попаданием в резонансы фононных реплик.

Недостатком методики ФЛ можно считать сложность интерпретации данных [70]. Например, как было показано выше, при нерезонасном возбуждении необходимо учитывать процессы формирования оптически активных экситонов. Зачастую различные механизмы могут приводить к похожим наблюдаемым результатам, и в реальных системах все они могут происходить одновременно. Стоит отметить, что в результате некогерентного многоступенчатого процесса энергетической релаксации с испусканием фононов теряется информация о фазе возбуждающего света, поэтому свечение ФЛ происходит во все направлениях. Упомянутые недостатки частично можно обойти, применяя квазирезонансное возбуждение в спектральной окрестности интересующего резонанса. Однако, такой метод всегда имеет проблему отделения полезного сигнала от засветки рассеянным возбуждающим светом. Например, приходится детектировать ФЛ в поляризации, скрещенной с возбуждающим светом.

#### 1.2.2 Резонансная фотолюминесценция

Квазирезонансное импульсное возбуждение экситонов внутри светового конуса, проиллюстрированное на рисунке 5, несмотря на экспериментальные трудности, привлекательно возможностью изучения собственных свойств экситонов, например, излучательного времени жизни  $\tau_R$  [71]. Первоначальные теоретические расчеты  $\tau_R$  экситонов в КЯ на основе GaAs имели довольно большие расхождения. Ханамура привел оценку около 3 пс [72] Андреани и соавторы оценили  $\tau_R$  около 25 пс для экситона с тяжелой дыркой (HH) в КЯ

22



Рис. 5: Схематическое изображение дисперсии для экситонных состояний в КЯ и линейной дисперсии света.

 $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  толщиной 10 нм [53], при этом экспериментальные результаты показали на порядок более длинные времена [73, 74]. Цитрин показал, что несколько параметров существенно влияют на время затухания ФЛ [54], а именно: в случае свободных экситонов  $\tau_R$  определяется только величиной  $\Gamma_0$ , пропорциональной силе осциллятора экситонного резонанса. Локализация экситонов в флуктуационном потенциале приводит к увеличению  $\tau_{R}$ . В реальных системах необходимо рассматривать ансамбль локализованных и свободных экситонов, в результате чего время  $\tau_R$  будет определяться соотношением частиц в ансамбле. Такой учет позволяет качественно объяснить расхождения в опубликованных экспериментальных результатах [73, 74].

Другим немаловажным фактором является влияние дефазировки вследствие упругого рассеяния экситонов на время затухания ФЛ. Анализ показывает, что время  $au_R$  имеет прямо-пропорциональную зависимость от величины однородной ширины экситонного резонанса при условии, что последняя много больше энергии температурного разброса kT [54] и кинетической энергии экситонов на границе светового конуса. Такое поведение было экспериментально обнаружено при прямом измерении затухания ФЛ с помощью стрик-камеры [75]. Управление однородной шириной было реализовано с помощью накачки экситонного резервуара дополнительным импульсным лазером. Кинетика ФЛ наглядно показала, как при увеличении экситонной плотности значительно возрастает  $\tau_R$ , которое с течением времени уменьшалось до исходного значения по мере уменьшения резервуара экситонов.

При фемтосекундном импульсном резонансном возбуждении ансамбль эк-

ситонов изначально обладает когерентностью, которая затухает из-за процессов рассеяния. Они приводят к изменению волнового вектора экситонов вдоль плоскости ямы, что в свою очередь позволяет наблюдать ФЛ в направлениях, отличных от направления пропускания и отражения возбуждающего света. Детектирование в направлениях рассеяния показало, что кинетика ФЛ проявляет не только упомянутые процессы рассеяния и дефазировки экситонов, но и демонстрирует квантовые биения между экситонами с легкой (LH) и тяжелой (HH) дыркой [76]. Биения указывают на то, что скорость рассеяния квазиимпульса существенно выше скорости дефазировки экситонов, и изменение квазиимпульса не приводит к сбиванию относительной фазы между HH- и LHэкситоном.

#### 1.2.3 Спектроскопия отражения

В предыдущей части было показано, что свечение экситонной ФЛ сопровождается сторонними процессами перед актом излучения фотона: релаксация энергии и квазиимпульса в нерезонансном случае и рассеяние квазиимпульса при резонансном возбуждении. Спектроскопия отражения, напротив, не подразумевает наличие дополнительных процессов помимо оптической генерации экситонов и их последующей излучательной релаксации. Отражение света экситонным слоем в КЯ является когерентным процессом, то есть отвечает тому излучению, которое произведено ансамблем экситонов, сохранивших свою исходную когерентность. Поэтому в результате коллективной эмиссии конструктивная интерференция наблюдается только в направлениях пропускания и отражения возбуждающего света. Пропускание зачастую сложно экспериментально измерить из-за значительного поглощения света в подложке образца, а в направлении отражения от слоя КЯ, как правило, располагается тонкий слой толщиной не более 1 мкм.

Качественные представления об отражении тонким слоем КЯ с экситонным резонансом  $\omega_0$  можно получить, используя модель ансамбля классических лоренцевских атомных осцилляторов, взаимодействующих с монохроматической электромагнитной волной с частотой  $\omega$ . Диэлектрическая восприимчивость  $\chi$  будет иметь вид полюсной зависимости [77]:

$$\chi(\omega) = \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m_0} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega},\tag{3}$$

где  $\gamma$  - скорость затухания колебания атомных осцилляторов, N - их плотность и  $m_0$  - масса электрона в атоме. В окрестности резонанса можно считать  $\omega \approx \omega_0$ . Тогда

$$\chi(\omega) = \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m_0 2\omega_0} \frac{1}{\omega_0 - \omega - i\gamma/2} = \frac{\chi_0}{\omega_0 - \omega - i\tilde{\gamma}}, \ \chi_0 = \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m_0 2\omega_0}, \ \tilde{\gamma} = \gamma/2$$
(4)

Из системы уравнений Максвелла можно получить выражение для коэффициента отражения плоской волны, падающей по нормали на тонкой слой с восприимчивостью  $\chi(\omega)$ :

$$R(\omega) = \frac{\Gamma_R^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\Gamma_R + \tilde{\gamma})^2}, \ \Gamma_R = k\chi_0/2.$$
(5)

Спектр отражения имеет единственную резонансную особенность, центрированную на  $\omega_0$ , с формой Лоренциана и полушириной  $\Gamma_R + \tilde{\gamma}$ . Безусловно, это сильно упрощенная модель, однако качественно ее результат совпадает с результатами более строгих подходов, таких как взаимодействие линейно поляризованной волны с двухуровневыми осцилляторами, расположенными в тонкой среде [78, 79], решение волнового уравнения с нелокальным диэлектрическим откликом, а также квантовой теории возмущения и других методов [9, 53]. Выпишем получаемое выражение для амплитудного коэффициента отражения от слоя КЯ [9]:

$$r_{QW}(w) = \frac{i\Gamma_0}{\widetilde{\omega}_0 - \omega - i(\Gamma_0 + \Gamma)} \tag{6}$$

Здесь  $\Gamma_0$  - излучательная скорость затухания поляризации (излучательная ширина),  $\Gamma$  - безызлучательная скорость дефазировки,  $\tilde{\omega}_0$  - перенормированная частота экситонного резонанса. При нормальном падении света на образец с КЯ необходимо учитывать интерференцию со светом, отраженным от гладкой поверхности образца. При возбуждении светом, поляризованным вдоль плоскости падения (*p*-поляризация), под углом Брюстера отражение от поверхности пропадает [79], и измеряемый коэффициент отражения *R* содержит толь-

ко отклик от КЯ:

$$R = |r_{QW}|^2 = \frac{\Gamma_0^2}{(\tilde{\omega}_0 - \omega)^2 + (\Gamma_0 + \Gamma)^2}$$
(7)



Рис. 6: (а) Спектр отражения в брюстеровской геометрии от образца с КЯ толщиной 2, 3 и 4 нм. Пунктиром приведена подгонка с помощью комбинации выражений (7). (b) Разложение скорости фазовой релаксации на излучательную (красный), безызлучательную обратимую (синий) и безызлучательную необратимую (зеленый) составляющие. Из [80]. (c) Временной профиль сигнала затухания свободной индукции (тонкая линия) и Фурье-преобразование спектра отражения (толстая линия). Из [81].

Метод привлекателен своей экспериментальной простотой, при этом он позволяет получить богатый набор информации о процессах дефазировки экситонного ансамбля.  $\Gamma_0$  определяется силой осциллятора экситонного перехода и обратно пропорциональна радиационному времени жизни  $\tau_0 = 1/(2\Gamma_0)$ . Метод активно применяется для характеризации структур, определения зависимости экситонной силы осциллятора от толщины КЯ [80, 82, 83] и разделения механизмов дефазировки экситонов [79, 81]. Исследования, представленные на рисунке 6(а) показали, что в высококачественных образцах с КЯ на основе GaAs величина неоднородного уширения экситонных резонансов сравнима с радиационной шириной и даже может быть меньше. Поэтому при низких температурах и малых интенсивностях возбуждения основной вклад в необратимую фазовую релаксацию экситонов вносит именно излучательная рекомбинация.

В предыдущем разделе было показано, что результирующая скорость затухания экситонной ФЛ зависит от множества факторов. Спектроскопия отражения позволяет разделить излучательные и безызлучательные вклады в фазововую релаксацию. Так в экспериментальном исследовании излучательной скорости релаксации экситонов  $\Gamma_0$  в высококачественной КЯ существенного изменения экситонной силы осциллятора, прямопорциональной  $\Gamma_0$ , замечено не было ни при увеличении температуры в диапазоне 8-50 K, ни при фотоиндуцированном нерадиационном уширении экситонного резонанса [79], как показано на рисунке 6(b).

При использовании ультракоротких лазерных импульсов ширина экситонной линии в спектре отражения связана с кинетикой затухания сигнала через преобразование Фурье. Произведя данное преобразование от такого спектра, представленное на рисунке 6(с), можно получить временную зависимость затухания поляризации, которая совпадает с прямым измерением затухания свободной индукции [81]. При этом характерное время затухания прямого измерения и Фурье-преобразованного спектра отражения совпадает и соответствует обратной величине ширины контура отражения, определяемой полной скоростью фазовой релаксации  $\tau_{FID} = (\Gamma_0 + \Gamma)^{-1}$ . Таким образом, спектроскопия отражения является мощным инструментом исследования когерентной оптической динамики экситонов в наноструктурах.

#### 1.2.4 Метод накачки-зондирования в спектроскопии отражения

Не менее интересно применение спектроскопии отражения в качестве пробного отклика в нелинейной методике накачка-зондирование (Pump-Probe). Суть метода проиллюстрирована на рисунке 7. Методика заключается в мощном импульсном оптическом воздействии на систему накачкой и последующем детектировании изменения отклика пробным излучением малой мощности с разверткой по времени. Методика в своей основе проявляет многочастичные взаимодействия экситонов с экситонами, фононами и носителями заряда [84]. Вариации



Рис. 7: Схема импульсного экспериментального метода накачка-зондирования.

метода активно применялись для изучения влияния электрон-дырочной плазмы на экситонные резонансы в KЯ GaAs/AlGaAs, проявления эффектов заполнения фазового пространства и перенормировки запрещенной зоны [85]. В интересующей нас вариации метода спектр отражения, измеряемый с помощью фемтосекундных пробных импульсов, проявляет (зондирует) кинетику нестационарных процессов, индуцированных накачкой, через косвенное воздействие накачки на пробный отклик.

В работах [86, 87] метод применялся для исследования динамики резервуара экситонов с большим волновым вектором. Темные экситоны данного типа не имеют прямого канала излучательной рекомбинации, так как находятся вне светового конуса (см. рисунок 5). Как следствие, экситоны в резервуаре обладают сравнительно длинным временем релаксации в наносекундном диапазоне. При этом резервуар оказывает существенное влияние на оптически активные светлые экситоны посредством процессов рассеяния, что необходимо учитывать, например, при рассмотрении различных протоколов когерентного контроля. Именно через измерение дополнительного нерадиационного уширения экситонных линий в спектре отражения пробного излучения проводилось исследование динамики темных экситонов. Спектральные измерения продемонстрировали зависимость динамики от способа генерации резервуара. В частности, при генерации резервуара темных экситонов внутри слоя КЯ, динамика уширения (и соответственно динамика концентрации резервуара) проявляла быстрое начальное затухание, сменяющееся долгоживущим спадом с характерным временем больше периода повторения лазерных импульсов. Авторы работы связывают долгоживущий сигнал с накоплением резервуара темных экситонов. Релаксацию населенности резервуара удалось описать с помощью кинетической модели, рассматривающей как резонансное, так и нерезонансное возбуждение.

Дальнейшее развитие методики привело к обнаружению спиновых особенностей резервуара темных экситонов [67]. Было показано, что темные экситоны влияют на спектральное положение линий, соответствующих рекомбинации светлых экситонов, через обменное взаимодействие. Оказалось, что спектральным сдвигом можно управлять посредством приложения внешнего поперечного магнитного поля, которое вызывает Ларморову прецессию долгоживущего спина экситонов из резервуара. Для наблюдения эффекта необходимо было подобрать образец с КЯ очень высокого качества, так как осциллирующее спектральное смещение линий происходило на масштабе порядка 10 мкэВ.

Как было показано, методика накачки-зондирования применяется преимущественно для исследования многочастичных взаимодействий. Пробное излучение опосредованно ощущает на себе влияние накачки через изучаемый промежуточный процесс, а оптическая когерентность, созданная импульсом накачки, не сохраняется и не учитывается. Однако, интересен случай, когда пробное излучение может напрямую проявлять когерентный отклик системы на накачку. Так данная методика позволила пронаблюдать квантовые биения между квантово-размерными состояниями экситонов в КЯ [88]. Импульс накачки, спектрально настроенный на несколько экситонных резонансов, возбуждает когерентную суперпозицию состояний многоуровневой экситонной системы. Созданная когерентность нескольких экситонных уровней, описываемая набором недиагональных элементов экситонной матрицы плотности, испытывает осцилляции (биения) на частотах, соответствующих переходам между экситонными уровнями. Излучение зондирующего импульса когерентным образом воздействует на тот же самый экситонный ансамбль, что был возбужден импульсом накачки. Возникающее вторичное излучение в геометрии отражения зондирующего импульса проявляет квантовые биения в виде зависимости амплитуды отражения экситонных линий от функции временной задержки между импульсами накачки и зондирования. Данный эксперимент примечателен комбинацией концепции накачки-зондирования и теоретического формализма, используемого для описания когерентных процессов наподобие четырехволнового смешения.

## 1.3 Четырехволновое смешение и фотонное эхо

Вышеупомянутые подходы могут работать как в линейном, так и в нелинейном режиме возбуждения. Их можно охарактеризовать относительной экспериментальной простотой с одной стороны и зачастую сложной интерпретацией данных с другой стороны. Например, при существенном неоднородном уширении спектральных линий невозможно получить информацию об индивидуальных излучателях, формирующих неоднородный ансамбль, то есть информацию об однородной ширине линии. Преимущество принципиально нелинейных оптических методик состоит в возможности обойти ограничения линейных методов. Более того оптическая нелинейность принципиально необходима для интересующей нас потенциальной реализации протоколов когерентного контроля.

Далее мы рассмотрим нелинейный оптический метод исследования сверхбыстрой когерентной оптической динамики, в основе которого лежит явление четырехволнового смешения (four-wave mixing (FWM) в англоязычной литературе). Суть явления состоит в том, что в результате перекрестного взаимодействия трех электромагнитных волн с оптически активной нелинейной средой возникает четвертая волна, волновой вектор и частота которой зависят от всех исходных возбуждающих волн. Интенсивность процесса определяется величиной нелинейной диэлектрической восприимчивости третьего порядка  $\chi^{(3)}$ . Эффект ЧВС в различных вариациях подробно изложен в монографиях [17, 20]. Мы рассмотрим варианты вырожденного ЧВС, при котором частота возбуждающих волн одинакова, а в качестве среды ограничимся тонкими оптически активными полупроводниковыми слоями с резонансами экситонной природы.



Рис. 8: Схема возбуждения ЧВС последовательностью двух импульсов в тонком образце с изображением решетки населенности *n*.

Для исследования нестационарных сверхбыстрых когерентных процессов возбуждение производится последовательностью фемто- или пикосекундных лазерных импульсов. Применение импульсной техники обусловлено также крайне высокой величиной напряженности поля в импульсе, необходимой для надежного детектирования нелинейных откликов. На рисунке 8 представлена схема типичного эксперимента в геометрии на пропускание. Первый импульс с волновым вектором  $\vec{k}_1$  возбуждает тонкий слой излучателей (в нашем случае экситонов) и создает тем самым макроскопическую поляризацию, фаза которой навязана вектором  $\vec{k_1}$ . Второй импульс с волновым вектором  $\vec{k_2}$  также в свою очередь наводит поляризацию в среде, но ее пространственное распределение определяется вектором  $\vec{k}_2$ . Перекрестное взаимодействие поляризаций с оптическим возмущением приводит к созданию пространственной решетки населенности возбуждаемых излучателей, то есть к модуляции оптических свойств среды с периодом, определяемым разностью  $\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . В свою очередь поляризация, наведенная третьим импульсом с вектором  $\vec{k}_3$ , будет зависеть от решетки населенности и содержать компоненты, характеризуемые комбинацией векторов  $\vec{k}_{FWM} = \vec{k_3} \pm (\vec{k_2} - \vec{k_1})$ . Именно эти компоненты поляризации соответствуют когерентному излучению ЧВС в направлениях фазового синхронизма  $\vec{k}_{FWM}$ . Зачастую в качестве третьего пучка рассматривается самодифракция второго пучка  $\vec{k_3} = \vec{k_2}$ , и сигнал ЧВС детектируется в направлении  $\vec{k}_{FWM} = 2\vec{k_2} - \vec{k_1}$ .

Эффект ЧВС внешне выглядит как результат дифракции третьего светового пучка на интерференционной решетке, созданной первыми двумя пучками. Действительно, при условии пространственного и временного пересечения пучков возможно получить интерференционную картину в слое излучателей и тем самым создать решетку населенности. Решетка приведет к модуляции оптических свойств слоя (например, поглощения) и возникновению эффективной дифракционной решетки. Принципиальное отличие между подобной дифракцией и когерентным эффектом ЧВС состоит в механизме формирования решетки населенности. В эффекте ЧВС решетка возникает из-за нелинейного взаимодействия электрического поля одного светового пучка с поляризацией, индуцированной другим пучком. Наглядно разница наблюдается при использовании импульсной техники. При разделении во времени первых двух импульсов, например с помощью оптической линии задержки, интерференция не возникает, а поляризация может сохраняться и после действия импульса в течение времени фазовой релаксации  $T_2$ .

Эффект дифракции на интерференционной решетке исследовался в периодических структурах с КЯ при комнатной температуре [89, 90]. Пространственно модулированное фотовозбуждение экситонов и последующая их ионизация приводят к формированию решетки населенности электрон-дырочной плазмы. Проявление когерентной динамики экситонов при таких условиях не ожидается, однако цель подобных работ состояла больше в поиске сильно нелинейных сред для обработки информации оптическим способом при комнатной температуре.

Кинетика ЧВС определяется характером возбуждения и природой изучаемой системы [18, 24, 91]. В первом приближении данную задачу можно рассмотреть как взаимодействие ансамбля двухуровневых систем с электромагнитным полем в рамках дипольного приближения, используя формализм матрицы плотности [91—94]. Подробнее задача будет рассмотрена в следующей главе. Здесь же упомянем, что в зависимости от эксперимента (двух- или трехимпульсный протокол) мы можем наблюдать как кинетику затухания поляризации, то есть определить время необратимой фазовой релаксации  $T_2$ , так и кинетику затухания населенности возбужденного состояния, то есть определить время энергетической релаксации  $T_1$ .

## 1.3.1 Релаксационные процессы, наблюдаемые в четырехволновом смешении и фотонном эхе

Методика ЧВС позволяет получить богатый набор информации о механизмах потери оптической когерентности экситонов, созданной ультракоротким оптическим возбуждением. В силу неидеальности реальных систем в них всегда присутствуют флуктуации энергии экситонного уровня, которые приводят к флуктуациям резонансной частоты перехода и неоднородному уширению спектральных линий. После импульсного возбуждения неоднородного ансамбля разность фаз между индивидуальными излучателями будет нарастать с течением времени, что приведет к потере когерентности ансамбля (фазовой релаксации) с характерным временем  $T_2^*$ , обратно пропорциональным величине неоднородного разброса. Такой процесс ограничивает длительность когерентного линейного отклика, например в эксперименте по наблюдению затухания свободной индукции [81]. Однако, когерентность индивидуальных излучателей при этом сохраняется, поэтому такой механизм фазовой релаксации является обратимым. В протоколе ЧВС ансамбль излучателей так же испытывает относительную дефазировку, происходящую после действия первого импульса. Однако действие второго, так называемого рефазирующего импульса, задержанного во времени относительно первого на величину  $\tau_{12}$ , приводит к инверсии относительной дефазировки - рефазировке. Поэтому в момент времени  $2\tau_{12}$ после действия первого импульса ансамбль излучателей снова синхронизируется, и возникает макроскопическая поляризация с волновым вектором  $\vec{k}_{FWM}$ . Такой сигнал ЧВС называется фотонным эхом [22] по аналогии со спиновым эхом [95]. Главное преимущество метода ФЭ именно в нивелировании влияния обратимой фазовой релаксации. Остальные механизмы потери когерентности индивидуального излучателя являются необратимыми и характеризуются временем необратимой фазовой релаксацией  $T_2$ . Среди них многочастичные процессы упругого и неупругого рассеяния играют основную роль [23, 96].

Скорость необратимой фазовой релаксации  $\Gamma_2 = \frac{1}{T_2}$  определяет однородную ширину спектральной линии. Зачастую неоднородное уширение существенно больше однородной ширины, и именно оно определяет спектр поглощения или отражения. Преимущество ФЭ состоит в возможности разделить различные вклады в процесс дефазировки и определить однородную ширину, скрытую в линейной спектроскопии.

В случае однородного ансамбля кинетика сигнала есть затухающая экспоненциальная функция задержки между импульсами, показатель которой обратно пропорционален  $T_2$  при сканировании задержки между импульсами 1-2  $\tau_{12}$  и  $T_1$  при сканировании задержки между импульсами 2-3  $\tau_{23}$  (реализуемо только в трехимпульсном эксперименте) [18]. При возбуждении неоднородного ансамбля ультракоротким импульсом временной профиль эхо-сигнала представляет собой гауссов колокол, центр которого приходится на момент времени  $2\tau_{12}$  для двухимпульсного эксперимента и на  $2\tau_{12} + \tau_{23}$  для трехимпульсного эксперимента. Сигнал ЧВС, интегрированный по времени (TI-FWM), спадает с ростом задержки  $\tau_{12}$  с отличающимися показателями экспоненты в зависимости от того, однородно или неоднородно уширен ансамбль [23, 24]. В этом состоит проблема интерпретации данных TI-FWM, но техника измерения ЧВС с временным разрешением (TR-FWM), которую мы будем использовать в настоящей работе, дает однозначный ответ, так как детектируемый сигнал воспроизводит временной профиль ЧВС. Так же временное разрешение позволяет эффективно фильтровать полезный сигнал от паразитного рассеяния разной природы.

Первоначальной целью применения техники ЧВС к полупроводниковым структурам было определение базовых характеристик когерентной оптической динамики. Первое наблюдение ЧВС в КЯ GaAs/AlGaAs при низких температурах было выполнено Хегарти и коллегами [97]. Спектр сигнала имел выраженный резонанс в области экситонного перехода. Импульсы, формирующие решетку были совмещены по времени, поэтому информация о дефазировке не была получена. В последующей работе измерение TR-FWM показало, что сигнал представляет собой ФЭ [98]. Данные удалось качественно описать с помощью модели неоднородного ансамбля двухуровневых систем [92], но извлекаемое из подгонки время дефазировки Т<sub>2</sub> имело существенный разброс внутри экситонной спектральной линии. Ранние исследования ЧВС от экситонов в эпитаксиальном слое GaAs [99] и одиночной КЯ [100] также проявили когерентную динамику на временах единиц пикосекунд, как показано на рисунке 9(a). Соответствующая однородная ширина, пропорциональная  $\frac{1}{T_2}$ , совпадала с шириной спектра поглощения (рисунок 9(b)). Это означает, что ансамбль делокализованных экситонов в КЯ был преимущественно однородно уширен ввиду существенного рассеяния экситонов на дефектах и акустических фононах.

С помощью ЧВС стало возможно разделить различные вклады в оптическую дефазировку экситонов путем проведения температурных исследований [100, 101], определения влияния рассеяния на резервуаре некогерентных экситонов и свободных носителях заряда [102, 103]. Рассеяние на последних оказалось существенно сильнее экситон-экситонного рассеяния, причем оба механизма сильнее влияют на дефазировку в квазидвумерном случае по сравнению с трехмерным.

Неизбежные флуктуации квантующего потенциала КЯ также существенно влияют на когерентную оптическую динамику [96]. При большой величине неоднородного разброса наглядно проявляется разница между фемто- и пикосекундной техникой ЧВС [104]. При возбуждении широкоспектральным фемтосекундным импульсом возбуждаются не только локализованные, но и свободные экситоны, что проявляется в виде биений в кинетике сигнала (рисунок 9(с)). Помимо биений наблюдался долгоживущий неосциллирующий спад. Его происхождение удалось установить только с помощью возбуждения узкос-



Рис. 9: (а) Сигнал ЧВС как функция задержки  $\tau_{12}$ , измеренный в объемном слое и двух КЯ. (b) Зависимость однородной ширины спектра поглощения от температуры. Из [100]. (c) ЧВС как функция задержки между импульсами для фемто и пикосекундного (на вставке) возбуждения. (d) Спектральная зависимость времени дефазировки  $T_2$  в области экситонной линии фотолюминесценции. Из [104].

пектральными пикосекундными импульсами, которое проявило существенный разброс времени дефазировки на порядок по величине внутри экситонной спектральной линии (рисунок 9(d)). Увеличение степени локализации квазичастиц уменьшает вероятность рассеяния [105], что приводит к увеличению времени когерентности. Таким образом пикосекундное ЧВС может быть эффективным инструментом зондирования локализации экситонов на флуктуациях потенциала, чем мы будем активно пользоваться далее в работе.

При одновременном возбуждении двух и более экситонных резонансов в сигнале ЧВС проявляются квантовые биения в виде осцилляций во временном профиле. Например, с помощью ЧВС наблюдались квантовые биения экситонных состояний с легкой (LH) и тяжелой (HH) дыркой [104, 106—109]. Теоретическое описание удалось получить с помощью трехуровневой модели [110]. Частота биений соответствует энергетическому расщеплению между возбужденными уровнями. Нелинейный отклик позволяет отличить осцилляции, вызванные поляризационной интерференцией волн от двух независимых систем, от квантовомеханической интерференции между состояниями единой системы [108]. КЯ с выраженными HH-LH резонансами использовалась для демонстрации возможности воспроизведения временного профиля амплитуды ЧВС через обратное преобразование Фурье от измерений спектральной амплитуды и спектральной фазы сигнала [109]. По мере сканирования длины волны возбуждения изменялась пропорция возбужденных состояний в когерентной суперпозиции, что приводило к биениям во временном профиле ЧВС на частоте HH-LH расщепления. Осциллирующее поведение сигнала ЧВС также наблюдалось при возбуждении пары свободных и связанных экситонов [111], пары экситон-биэкситон [112, 113] и других систем [23].

В случае, когда работа нацелена на изучение свойств отдельного ансамбля квазичастиц, вместо широкоспектральных фемтосекундных импульсов предпочтительнее применять пикосекундную технику. Фемтосекундные импульсы, как показано выше, возбуждают одновременно несколько резонансов, в результате чего возникает многокомпонентный сигнал ЧВС, интерпретация которого затруднена [114]. Более того, возникают эффекты дефазировки, индуцированной возбуждением, и нелинейности более высоких порядков ввиду крайне высокой мгновенной амплитуды фемтосекундного импульса. Напротив, пикосекундные импульсы позволяют изолированно возбуждать интересующий ансамбль квазичастиц и минимизировать многочастичные эффекты. Уменьшение влияния механизмов дефазировки приводит к увеличению времени дефазировки до десятков пикосекунд в КЯ [115] и сотен пикосекунд в ансамблях КТ [116], поэтому потери в разрешающей способности по времени не возникает.

В последние годы ЧВС и ФЭ активно используются для исследования когерентной динамики экситонов в перспективных материалах, таких как наноструктуры на основе оксида цинка [101], нитрида галлия [117], монослои дихалькогенидов переходных металлов [118—120] и галогенидные перовскиты [121—123]. Главы 3 и 4 диссертации так же посвящены исследованию когерентной динамики в малоизученных структурах.

Методика ФЭ применяется для развития протоколов когерентного контроля экситонных комплексов чисто оптическим способом. Фундаментальным проявлением когерентного управления являются осцилляции Раби в сигнале ФЭ [24]. В соответствии с оптическими уравнениями Блоха населенность возбужденных состояний гармонически зависит от площади импульсов. Осцилляции Раби в сигнале ФЭ были продемонстрированы на структурах с КЯ [24, 115] и КТ [116, 124—126]. В режиме Раби осцилляций проявилась особенность возбуждения неоднородно уширенного ансамбля сравнительно длинными пикосекундными импульсами [125]. Излучатели с существенной отстройкой от частоты лазерного импульса испытывают дополнительную обратимую дефазировку в течение действия импульса. Дефазировка приводит к изменению момента времени возникновения ФЭ относительно классического случая - *Ханновского* эха. Подобные временные сдвиги необходимо учитывать при рассмотрении протоколов когерентного контроля ансамбля экситонов, в которых важно согласование последовательности импульсов по времени. Дальнейшие исследования продемонстрировали возможность управления сдвигом ФЭ с помощью приложения дополнительного контрольного импульса, компенсирующего относительную дефазировку излучателей в ансамбле [116].

#### 1.3.2 Спин-зависимое фотонное эхо

Внедрение магнитных эффектов в чисто оптический протокол ФЭ существенно расширило возможности когерентного контроля и привело к возникновению нового витка когерентной оптической динамики - спин-зависимое ФЭ [24]. Одновременное рассмотрение оптических и магнитных эффектов позволяет комбинировать преимущества каждого из них и добиться быстрого оптического когерентного управления с долгоживущим спиновым хранением.

В эксперименте спин-зависимого  $\Phi$ Э внешнее магнитное поле, перпендикулярное к направлению света (геометрия  $\Phi$ охта), вызывает прецессию спинов квазичастиц, ориентированных первым оптическим импульсом, вокруг вектора магнитного поля на Ларморовой частоте [127]. Протокол эксперимента показан на рисунке 10(d). К моменту полупериода прецессии магнитное поле переведет когерентность между уровнями, связанными оптическим переходом, в так называемую темную когерентность между уровнями без оптического перехода. Приходящий в этот момент второй рефазирующий импульс в зависимости от поляризации переведет когерентность либо в чисто спиновую когерентность, либо в другую темную когерентность. Далее магнитное поле через еще один полупериод Ларморовой прецесси снова переведет темную когерентность в светлую, из которой возможно свечение  $\Phi$ Э. Поэтому при сканировании задержки между импульсами сигнал  $\Phi$ Э будет проявлять биения на Ларморовой частоте, что впервые было продемонстрировано на ансамбле трионов в КЯ CdTe/CdMgTe


Рис. 10: Кинетики затухания амплитуды двухимпульсного ФЭ в нулевом магнитном поле (a) и при B = 0.7 T (b), и трехимпульсного ФЭ (c). (d) Протокол действия импульсов и магнитного поля (осцилляции) на четырехуровневую электрон-трионную систему с изображением стрелками когерентности в ансамбле. В [127] используются только первые два импульса (a-b), в [128] - все (c-d).

[127]. Кинетики затухания амплитуды спин-зависимого ФЭ приведены на рисунке 10(а) и (b). Ситуация принципиально отличается от ранее упомянутых случаев квантовых биений, в которых положения уровней и частота жестко заданы параметрами роста структуры. Включение внешнего магнитного поля в протокол ФЭ вносит новую степень свободы, благодаря которой можно управлять расщеплением исходно вырожденных по спину состояний.

Наиболее интересный сценарий связан с оптической когерентностью, переведенной в спиновую подсистему основных электронных состояний. Микроскопическая спиновая когерентность не зависит от процессов быстрой оптической дефазировки или излучательной рекомбинации экситонных комплексов. Можно сказать, что информация о световом импульсе сохраняется в спиновых состояниях электронов, то есть, записана и там заморожена. Время хранения спиновой когерентности определяется уже только процессами спиновой дефазировки, которые, как правило, на несколько порядков медленнее оптической. Однако, возникает вопрос, каким образом эту долгоживущую когерентность считывать. Трехимпульсное спин-зависимое ФЭ предоставляет такую возмож-

37

ность [128]. По аналогии с действием второго импульса третий импульс с определенной поляризацией, определяемой правилами отбора, переводит когерентность из спиновой подсистемы обратно в темную когерентность между основным и возбужденным состоянием. Далее через полупериод Ларморовой прецессии (рисунок 10(d)) магнитное поле снова переведет когерентность в светлую конфигурацию, и условие для высвечивания трехимпульсного ФЭ будет выполнено. Реализация такого протокола была продемонстрирована на системе трионов в КЯ CdTe/CdMgTe [128]. В нулевом магнитном поле трехимпульсное эхо затухало со временем жизни трионов  $T_1 = 45$  пс, а в магнитном поле с превышающим на три порядка временем продольной спиновой релаксации  $T_1^e = 50$ нс, как показано на рисунке 10(с). В итоге метод позволяет получить сигнал трехимпульсного ФЭ на временах, существенно превосходящих время жизни триона, что может быть использовано для реализации оптической памяти в наноструктурах.

Так как ключевым механизмом спин-зависимого ФЭ является Ларморова прецессия, то метод предоставляет богатый набор информации о спиновых свойствах квазичастиц. Частота осцилляций напрямую зависит от величины дфактора электрона и дырки в трионе, которые можно извлечь путем измерения сигнала ФЭ при различной величине магнитного поля. Измерения многокомпонентных биений в кинетике затухания ФЭ при различной ориентации образца относительно вектора магнитного поля проявили не только наличие электронного и дырочного q-факторов [129], но и позволили определить величину дырочной анизотропии в КЯ CdTe/CdMgTe [130] и ансамбле КТ InGaAs/GaAs [131]. Стоит отметить, что в отличие от методики измерения сигнала Керровского вращения, часто используемого для определения q-фактора, сигнал двухимпульсного спин-зависимого ФЭ формируется только теми квазичастицами, которые сохранили свою оптическую когерентность. Также два метода по-разному чувствительны к локальной спиновой динамике - оказалось, что прыжковый перенос резидентных электронов приводит к сокращению времени затухания сигнала ФЭ, и, наоборот, увеличению времени поперечной спиновой релаксации ввиду усреднения флуктуирующего поля ядер [132].

Дополнительное внедрение методики двумерной Фурье-спектроскопии, активно развивающейся в последние годы [133], в спин-зависимое ФЭ было использовано для исследования Зеемановского расщепления ансамблей трионов и экситонов, локализованных на нейтральном доноре, в КЯ [134]. Метод позволил определить разницу в расщеплении электронов, локализованных на нейтральным доноре и на флуктуациях потенциала, в диапазоне долей мкэВ при том, что однородная ширина оптических переходов на два порядка больше величины расщепления.

Упомянутые работы были посвящены либо исследованию трионов, либо экситонов, локализованных на нейтральном доноре, поэтому протоколы долгоживущего спин-зависимого ФЭ требуют достаточного уровня легирования для получения сравнительного большой силы осциллятора перехода. С точки зрения применения методики ФЭ эти системы эквивалентны, так как обе характеризуются четырехуровневой моделью с двукратно вырожденным основным состоянием и двумя возбужденными состояниями. В отсутствии магнитного поля при использовании возбуждения с круговой поляризацией можно выделить две не взаимодействующие двухуровневые подсистемы. Нейтральные экситоны в наноструктурах обычно описываются с помощью пятиуровневой модели, состоящей из невырожденного основного состояния кристалла и двух дублетов оптически светлых и так называемых темных экситонов, оптические переходы в которые запрещены по спину. Упрощенная схема, не включающая темные состояния, представляет собой V-схему. Принципиальное отличие энергетических схем экситонов и трионов проявилось в поляриметрических зависимостях сигнала классического ФЭ в виде качественных и количественных изменений наблюдаемой картины [122, 135]. В динамике сигнала спин-зависимого ФЭ также имеются существенные отличия. В двухимпульсном эксперименте Ларморова прецессия спинов электрона и дырки в экситоне смешивает состояния светлых и темных экситонов, такая задача была рассмотрена теоретически [136]. Смешение должно приводить к осциллирующему поведению сигнала двухимпульсного ФЭ при сканировании задержки, но экспериментального подтверждения эффекта не было до настоящей работы. Протокол долгоживущего спин-зависимого  $\Phi \Theta$  в варианте, представленном на рис. 10(d), нереализуем на системе экситонов, так как отсутствует спиновое вырождение основного состо-ЯНИЯ.

### 1.4 Выводы и задачи работы

В настоящей главе мы проанализировали, как проявляется сверхбыстрая оптическая динамика экситонов в полупроводниковых наноструктурах в различных линейных и нелинейных оптических методиках. Анализ имеющейся литературы показал, что собственные свойства экситонов, такие как время оптической когерентности, энергетическая релаксация и величина неоднородного уширения наиболее наглядно проявляются в ФЭ. Можно сказать, что ФЭ как нелинейный оптический инструмент исследования когерентной оптической динамики в ряде случаев имеет массу преимуществ по сравнению с линейными спектроскопическими методами. ЧВС и ФЭ продемонстрировали свою привлекательность в ходе исследования оптических свойств экситонов в уже ставших классическими системах на основе арсенида галлия. Представленные работы по исследованию экситонов в новых материалах также подтвердили потенциал методики. Принципиальной особенностью ФЭ является возможность реализации протоколов когерентного управления экситонным ансамблем, чему была посвящена заключительная часть обзора.

Целью настоящей работы является развитие возможностей когерентного контроля экситонов и их заряженных комплексов методом ФЭ. Развитие предлагается в двух плоскостях - приложение метода к изучению сверхбыстрой когерентной динамики в перспективных новых полупроводниковых наноструктурах, а также развитие протоколов когерентного контроля оптических возбуждений на основе метода спин-зависимого ФЭ.

## Глава 2. Теоретические и экспериментальные подходы для исследования фотонного эха от экситонов в наноструктурах

В главе описаны теоретические и экспериментальные подходы, которые будут использованы далее для изучения фотонного эха от ансамблей экситонов и трионов в тонких слоистых наноструктурах с квантовыми ямами. В главе приведено описание эволюции двухуровневой системы, взаимодействующей с электромагнитным полем, с использованием формализма матрицы плотности, рассмотрен протокол фотонного эха от неоднородного ансамбля двухуровневых систем и приведена геометрическая интерпретация с помощью сферы Блоха. Показано, какая модификация исходной задачи необходима для описания сигала фотонного эха от ансамблей экситонов и трионов с учетом тонкой структуры и правил отбора; уделено внимание спиновым эффектам в фотонном эхе. Заключительная часть главы посвящена подробному описанию экспериментальной установки и методики детектирования сигнала, используемой в работе. Приведена схема оптической установки пикосекундного двухимпульсного спин-зависимого фотонного эха, описаны особенности детектирования сигнала с применением оптического гетеродинирования.

## 2.1 Теоретическое описание фотонного эха от ансамбля двухуровневых систем

Рассмотрим эффекты ЧВС и ФЭ в полупроводниковых наноструктурах с тонким активным слоем. Нелинейная восприимчивость определяется внутренней микроскопической электронной структурой системы, поэтому для ее расчета естественно использовать квантово-механический подход. В его основе лежит формализм матрицы плотности, эволюция которой определяется уравнением Линдблада. Микроскопические выражения для нелинейных восприимчивостей и соответствующих нелинейных поляризаций подробно рассмотрены в монографии И. Р. Шена [20].

Экситонный ансамбль в наноструктурах как правило имеет ярко выраженный и достаточно изолированный оптический резонанс, что позволяет нам вынести за рамки обсуждения наличие остальных оптических переходов и использовать упрощенную модель ансамбля двухуровневых систем (ДС). Анализу когерентной динамики двухуровневых атомов посвящены монография Л. Аллена и Дж. Эберли [94], а также главы в работах [18, 32, 40, 137]. В нашем случае нижний уровень ДС соответствует основному состоянию кристалла, а верхний - возбужденному состоянию с одним экситоном. Экситонное состояние является метастабильным состоянием ввиду наличия каналов излучательной и безызлучательной релаксации. Для описания процессов фазовой и энергетической релаксации вводятся феноменологические члены в уравнение Линдблада. Рассмотрим далее основы теоретического подхода для описания эксперимента по ФЭ на основании приведенной литературы [18, 94, 138].

## 2.1.1 Динамика ансамбля двухуровневых систем во внешнем электромагнитном поле



Рис. 11: Схематическое изображение двухуровневой системы, взаимодействующей с лазерным импульсом с несущей оптической частотой  $\omega$ . Неоднородное распределение резонансов двухуровневых систем, обладающих однородной шириной, в окрестности центральной частоты перехода  $\omega_0$ .

Для анализа когерентной динамики ансамбля экситонов в наноструктурах воспользуемся моделью неоднородного ансамбля ДС. Взаимодействие такой системы с лазерным импульсом условно изображено на рисунке 11. Несмотря на довольно сильное упрощение модель корректно описывает основные наблюдаемые эффекты в ЧВС, а при последовательном введении дополнительных параметров предсказывает и более тонкие особенности. Цель данного раздела с помощью минимального теоретического аппарата продемонстрировать общую картину когерентного взаимодействия. В дальнейшем этот подход может быть углублен для решения конкретных частных задач. Основные выводы данного раздела отражены в нашей публикации [138]. Эволюция квантовой системы, как показано в приложении А.1, определяется решением квантового уравнения Лиувилля:

$$i\hbar \frac{\partial \rho(t)}{\partial t} = [\hat{H}(t), \rho(t)], \qquad (8)$$

где  $\rho$  - матрица плотности системы, формализм которой описан в приложении A.1. Невозмущенный гамильтониан ДС  $\hat{H}_0$  имеет диагональный вид в базисе собственных состояний:

$$\hat{H}_0 = \begin{pmatrix} 0 & 0\\ 0 & \hbar\omega_0, \end{pmatrix} \tag{9}$$

где  $\omega_0$  - частота оптического перехода между основным и возбужденным состоянием ДС, которая имеет неоднородный разброс в ансамбле ДС. Допустим, такой оптический переход разрешен в дипольном приближении, тогда Гамильтониан взаимодействия с электромагнитным полем  $\hat{V} = -\hat{d}E$  имеет следующий вид:

$$\hat{V} = - \begin{pmatrix} 0 & d^* E_0^* e^{i\omega t} \\ dE_0 e^{-i\omega t} & 0 \end{pmatrix},$$
(10)

где  $d = \langle 2|\hat{d}|1\rangle$  - матричный элемент оператора дипольного момента  $\hat{d}$ , соответствующий переходу из состояния 1 в состояние 2,  $E_0$  - амплитуда плоской электромагнитной волны с частотой  $\omega$ . Выпишем полный гамильтониан  $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$ :

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} 0 & -d^* E_0^* e^{i\omega t} \\ -dE_0 e^{-i\omega t} & \hbar\omega_0 \end{pmatrix},$$
(11)

Каждой ДС соответствует матрица плотности  $\rho$  размерностью 2 × 2, эволюция которой определяется уравнением Лиувилля (8). Недиагональные члены гамильтониана содержат множители, осциллирующие на оптической частоте, которые усложняют решение дифференциальных уравнений. Эту особенность можно обойти путем последующего преобразования, эквивалентного переходу во вращающуюся систему отсчета [18, 94]. Введем вспомогательную матрицу M:

$$M = \begin{pmatrix} 0 & 0\\ 0 & \omega \end{pmatrix},\tag{12}$$

с помощью которой преобразуем  $\rho$ :

$$\tilde{\rho} = e^{iMt}\rho e^{-iMt} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\omega t} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{-i\omega t} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12}e^{-i\omega t} \\ \rho_{21}e^{i\omega t} & \rho_{22} \end{pmatrix}.$$
 (13)

Дифференцируя  $\tilde{\rho}$  с учетом (8) получим уравнение Лиувилля:

$$i\hbar\frac{\partial\tilde{\rho}}{\partial t} = [\underbrace{e^{iMt}\hat{H}e^{-iMt}}_{\tilde{\hat{H}}} - \hbar M, \tilde{\rho}] = [\hat{H}_{eff}, \tilde{\rho}].$$
(14)

Матрица преобразованного гамильтониана  $\hat{H}_{eff}$  уже не содержит быстро осциллирующих членов:

$$\hat{H}_{eff} = \begin{pmatrix} 0 & -d^* E_0^* \\ -dE_0 & \hbar\omega_0 \end{pmatrix} - \hbar \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \omega \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -d^* E_0^* \\ -dE_0 & \hbar\Delta \end{pmatrix} = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \Omega^*/2 \\ \Omega/2 & \Delta \end{pmatrix},$$
(15)

где  $\Omega = \frac{-2dE_0}{\hbar}$  - частота Раби  $\Delta = \omega_0 - \omega$  - отстройка частоты возбуждения от резонанса. Таким образом мы получили уравнение Лиувилля для преобразованной матрицы плотности и эффективного гамильтониана, не имеющего явной зависимости от времени. Запишем (14) в матричном виде

$$\begin{pmatrix} \dot{\tilde{\rho}}_{11} & \dot{\tilde{\rho}}_{12} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{21} & \dot{\tilde{\rho}}_{22} \end{pmatrix} = -i \begin{pmatrix} \frac{\Omega^*}{2} \tilde{\rho}_{21} - \frac{\Omega}{2} \tilde{\rho}_{12} & \frac{\Omega^*}{2} (\tilde{\rho}_{22} - \tilde{\rho}_{11}) - \Delta \tilde{\rho}_{12} \\ \frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{11} - \tilde{\rho}_{22}) + \Delta \tilde{\rho}_{21} & \frac{\Omega}{2} \tilde{\rho}_{12} - \frac{\Omega^*}{2} \tilde{\rho}_{21} \end{pmatrix} .$$
 (16)

Совокупность данных дифференциальных уравнений для элементов матрицы плотности называется системой оптических уравнений Блоха. Поскольку  $\hat{H}_{eff}$  не зависит от времени явно, эволюцию  $\tilde{\rho}(t)$  можно определить через начальное состояние исходной матрицы плотности  $\rho(0)$  в соответствии с приложением A.1 (см. уравнение 67):

$$\tilde{\rho}(t) = e^{-(i/\hbar)\hat{H}_{eff}t}\tilde{\rho}(0)e^{(i/\hbar)\hat{H}_{eff}t},$$
(17)

через которое определить эволюцию исходной матрицы  $\rho(t)$ 

$$\rho(t) = e^{-iMt} e^{-(i/\hbar)\hat{H}_{eff}t} e^{iMt} \rho(0) e^{-iMt} e^{(i/\hbar)\hat{H}_{eff}t} e^{iMt}$$
(18)

### 2.1.2 Действие ультракороткого лазерного импульса

Рассмотрим двухуровневую систему, на которую действует ультракороткий лазерный импульс прямоугольной формы длительностью  $t_p$ , при которой можно пренебречь набегом фазы из-за отстройки  $\Delta \cdot t_p \ll 1$ . Тогда гамильтониан  $\hat{H}_{eff} \rightarrow \hat{H}_l$  содержит только недиагональные члены, и можно получить явное выражение для множителей в выражении (17):

$$e^{(i/\hbar)\hat{H}_{l}t_{p}} = I + it_{p} \begin{pmatrix} 0 & \Omega^{*}/2\\ \Omega/2 & 0 \end{pmatrix} + \frac{(it_{p})^{2}}{2} \begin{pmatrix} |\Omega/2|^{2} & 0\\ 0 & |\Omega/2|^{2} \end{pmatrix} + .. = \\ = \begin{pmatrix} \cos\theta/2 & iq^{*}\sin\theta/2\\ iq\sin\theta/2 & \cos\theta/2 \end{pmatrix}, \quad (19)$$

где  $\theta = |\Omega t_p|$  - площадь импульса,  $q = \frac{\Omega}{|\Omega|}$ . Тогда действие импульса на матрицу плотности во вращающейся системе отсчета будет следующим:

$$\tilde{\rho}^{a} = \begin{pmatrix} \tilde{\rho}_{11}^{b} \cos^{2} \theta/2 + \tilde{\rho}_{22}^{b} \sin^{2} \theta/2 - & \tilde{\rho}_{12}^{b} \cos^{2} \theta/2 + (q^{*})^{2} \tilde{\rho}_{21}^{b} \sin^{2} \theta/2 - \\ -iq \sin \theta/2 \cos \theta/2 (q^{*} \tilde{\rho}_{21} - q \tilde{\rho}_{12}) & -iq^{*} \sin \theta/2 \cos \theta/2 (\tilde{\rho}_{22} - \tilde{\rho}_{11}) \\ \hline{\tilde{\rho}_{21}^{b} \cos^{2} \theta/2 + q^{2} \tilde{\rho}_{12}^{b} \sin^{2} \theta/2 - & \tilde{\rho}_{11}^{b} \sin^{2} \theta/2 + \tilde{\rho}_{22}^{b} \cos^{2} \theta/2 - \\ -iq \sin \theta/2 \cos \theta/2 (\tilde{\rho}_{11} - \tilde{\rho}_{22}) & -i \sin \theta/2 \cos \theta/2 (q \tilde{\rho}_{12} - q^{*} \tilde{\rho}_{21}) \end{pmatrix},$$
(20)

где верхние индексы  $\{b, a\}$  обозначают элементы  $\tilde{\rho}_{ij}$  до и после действия импульса соответственно. Наиболее наглядно изменение матрицы плотности невозмущенной системы под действием импульсами площадью  $\theta = \pi/2; \pi$ :

$$\rho = \tilde{\rho} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \xrightarrow{\theta = \pi/2} \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & i \\ -i & 1 \end{pmatrix}; \quad \tilde{\rho} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \xrightarrow{\theta = \pi} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}. \tag{21}$$

Импульс площадью  $\theta = \pi/2$  переводит ДС из основного состояния в когерентную суперпозицию с нулевой инверсией  $\tilde{\rho}_{22} - \tilde{\rho}_{11}$ , а импульс  $\theta = \pi$  полностью инвертирует ДС в возбужденное состояние.

#### 2.1.3 Свободная прецессия

В отсутствии возмущения гамильтониан  $\hat{H}_{eff}$  имеет диагональный вид, поэтому эволюция  $\tilde{\rho}(t)$  определяется согласно (17)

$$\tilde{\rho}(t) = \begin{pmatrix} \tilde{\rho}_{11} & \tilde{\rho}_{12}e^{i\Delta t} \\ \tilde{\rho}_{21}e^{-i\Delta t} & \tilde{\rho}_{22} \end{pmatrix}.$$
(22)

С течением времени недиагональные члены, ответственные за поляризацию, прецессируют на частоте отстройки, при этом диагональные члены, отвечающие за населенность основного и возбужденного состояний, остаются постоянными.

В предыдущих рассуждениях мы не учитывали фазовую и энергетическую релаксации, непременно наблюдаемые в реальных системах. Это оправдано при рассмотрении действия ультракоротких лазерных импульсов на систему, длительность которых много меньше характерных времен релаксации, однако при рассмотрении свободной прецессии учет необходим. Релаксационные члены Γ вводятся в оптические уравнения Блоха феноменологически, что соответствует переходу от уравнения Лиувилля (68) к уравнению Линдблада:

$$i\hbar\frac{\partial\rho}{\partial t} = [\hat{H},\rho] + i\hbar\Gamma; \ \Gamma = \begin{pmatrix} \rho_{22}/T_1 & -\rho_{12}/T_2\\ -\rho_{21}/T_2 & -\rho_{22}/T_1 \end{pmatrix}$$
(23)

Здесь  $T_1$  - время энергетической релаксации, а  $T_2$  - время необратимой фазовой релаксации (дефазировки). Отметим, что скорость необратимой фазовой релаксации  $\Gamma_2 = 1/T_2$  ограничена снизу скоростью энергетической релаксации  $\Gamma_1 = 1/T_1$ 

$$\Gamma_2 = \Gamma_1 / 2 + \Gamma_C, \tag{24}$$

где  $\Gamma_C$  - скорость чистой фазовой релаксации (*Pure dephasing*) характеризует процессы упругого рассеяния. Наличие релаксационных членов приводит к экспоненциальному затуханию элементов матрицы плотности  $\tilde{\rho}$  во время свободной прецессии:

$$\tilde{\rho}_{12}(t) = \tilde{\rho}_{12} e^{(i\Delta - 1/T_2)t}; \ \tilde{\rho}_{22}(t) = \tilde{\rho}_{22} e^{-t/T_1}$$
(25)

### 2.1.4 Протокол фотонного эха



Рис. 12: Схематичное изображение макроскопической поляризации в форме ФЭ (РЕ на рисунке) после возбуждения системы импульсами 1 и 2, задержанными друг относительно друга на  $\tau_{12}$ . Для простоты считается, что импульсы имеют пренебрежимо малую длительность с конечной площадью.

Рассмотрим протокол двухимпульсного  $\Phi \Im$  для неоднородного ансамбля ДС, представленный на рисунке 12. Исходно ансамбль находится в основном состоянии. Затем первый лазерный импульс переводит каждую ДС в ансамбле в когерентную суперпозицию. После действия импульса системы в ансамбле испытывают обратимую и необратимую фазовую релаксацию, а также энергетическую релаксацию. Через промежуток  $\tau_{12}$  на ансамбль действует второй, рефазирующий импульс. Нас будет интересовать макроскопическая поляризация P после действия второго импульса. Для наглядности возьмем первый импульс площадью  $\theta = \pi/2$ , а второй  $\theta = \pi$ . Отметим, что результат принципиально не изменится при произвольных площадях импульсов. Данный протокол соответствует поочередному действию гамильтониана  $\hat{H}_L$  и невозмущенного диагонального гамильтониана  $\hat{H}_{eff}$  на исходную  $\tilde{\rho}(0)$ :

$$\tilde{\rho}(0) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \xrightarrow{\theta = \pi/2} \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & i \\ -i & 1 \end{pmatrix} \xrightarrow{\tau_{12}} \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 2 - e^{-\tau_{12}/T_1} & ie^{(i\Delta - 1/T_2)\tau_{12}} \\ -ie^{(-i\Delta - 1/T_2)\tau_{12}} & e^{-\tau_{12}/T_1} \end{pmatrix} \xrightarrow{\theta = \pi} \frac{1}{2} \begin{pmatrix} e^{-\tau_{12}/T_1} & -ie^{(-i\Delta - 1/T_2)\tau_{12}} \\ ie^{(i\Delta - 1/T_2)\tau_{12}} & 2 - e^{-\tau_{12}/T_1} \end{pmatrix} \xrightarrow{t - \tau_{12}} \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 2 + e^{(-t/T_1)}(1 - 2e^{(\tau_{12}/T_1)}) & -ie^{i\Delta(t - 2\tau_{12}) - t/T_2} \\ ie^{-i\Delta(t - 2\tau_{12}) - t/T_2} & e^{(-t/T_1)}(2e^{(\tau_{12}/T_1)} - 1) \end{pmatrix}$$
(26)

Мы определили эволюцию  $\tilde{\rho}(t)$ , а значит и эволюцию исходной матрицы плотности  $\rho(t)$  по правилу (13). Поляризация  $P_{\Delta}$ , наведенная одиночной ДС, определяется средним значением дипольного момента  $\langle \hat{d} \rangle = \text{Tr}(\hat{d}\rho) \propto \text{Re}(\tilde{\rho}_{12}e^{i\omega t})$ (см. Приложение, уравнение (59)) и после действия второго импульса равна

$$P_{\Delta} \propto \sin(\omega t + \Delta (t - 2\tau_{12}))e^{-t/T_2}$$
(27)

Обратим внимание, что при  $t = 2\tau_{12}$  вклад в фазу поляризации, связанный с оптической отстройкой, обнуляется и все ДС в ансамбле сфазированы. Макроскопическая поляризация P определяется интегрированием по неоднородному ансамблю ДС. Используя Гауссово распределение ансамбля по частоте перехода  $\omega_0$  (и соответственно отстройки  $\Delta$ ) с центральной частотой  $\bar{\omega}_0 = \omega$  и дисперсией  $\sigma^2 = 8\ln(2)/T_2^*$ , получаем

$$P \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \sin(\omega t + \Delta (t - 2\tau_{12})) e^{-t/T_2} e^{-\Delta^2/2\sigma^2} d\Delta = P_0 \sin(\omega t) e^{-t/T_2} e^{\frac{-4\ln(2)(t - 2\tau_{12})^2}{T_2^{*2}}}$$
(28)

Таким образом детектируемая в эксперименте огибающая макроскопической поляризации имеет форму гауссова пика, центрированного на  $t = 2\tau_{12}$  с шириной  $T_2^*$  и амплитудой, затухающей экспоненциально со временем  $T_2$ . Полученный результат согласуется с опубликованными расчетами [18, 92].

Существует наглядная геометрическая интерпретация динамики ДС с использованием вектора Блоха  $\vec{S} = (u, v, w)$ , координаты которого во вращающейся системе отсчета определяются через элементы  $\tilde{\rho}$ 

$$\begin{cases} u = \tilde{\rho}_{12} + \tilde{\rho}_{21} = 2 \operatorname{Re}(\tilde{\rho}_{12}) \\ v = i(\tilde{\rho}_{12} - \tilde{\rho}_{21}) = -2 \operatorname{Im}(\tilde{\rho}_{12}) \\ w = \tilde{\rho}_{22} - \tilde{\rho}_{11} = n_2 - n_1 \end{cases}$$
(29)

Вертикальная проекция вектора  $\vec{S}$  отвечает разнице населенностей возбужденного и основного состояний ДС, а горизонтальные компоненты соответствуют вещественной и мнимой части элемента матрицы плотности  $\tilde{\rho}_{12}$ , с которым связана поляризация. Для ДС, можно выбрать фазу таким образом, чтобы  $\Omega$  была



Рис. 13: Динамика ансамбля векторов Блоха в протоколе двух-импульсного ФЭ.

вещественной [94]. Тогда оптические уравнения Блоха сводятся к задаче вращения вектора  $\vec{S}$ :

$$\dot{\vec{S}} = \vec{\Omega} \times \vec{S},\tag{30}$$

где вектор  $\vec{\Omega} = (-\Omega, 0, -\Delta)$ . Теперь мы можем изобразить динамику ансамбля ДС в протоколе  $\Phi \ni (26)$  как динамику набора векторов  $\vec{S}$ , используя вышеприведенный результат изменения  $\tilde{\rho}$  под действием импульсов и во время свободной прецессии между ними, как показано на рисунке (13).

В этой части мы проанализировали динамику ансамбля ДС в протоколе двухимпульсного ФЭ в режиме ультракоротких импульсов. Проведя аналогичные расчеты для протокола трехимпульсного фотонного эха можно показать, что амплитуда стимулированного ФЭ будет затухать с ростом задержки между вторым и третьим импульсами  $\tau_{23}$  как  $P \propto e^{-\tau_{23}/T_1}$ . Данная теория, несмотря на свою относительную простоту, даже в базовом варианте прекрасно согласуется с экспериментальными данными и позволяет описать сигнал ФЭ от ансамблей экситонов [138] и их заряженных комплексов в полупроводниковых наноструктурах в фемто- и пикосекундном диапазоне времен. Используя описанный подход, можно развивать задачу для частных случаев [18, 32]. Например, при использовании импульсов произвольных площадей можно показать, что сигнал ФЭ будет испытывать осцилляции Раби при сканировании площади первого и второго импульсов [125]. Учет конечной длительности импульсов приводит к эффекту сдвига и деформации пика ФЭ, а введение дополнительных механизмов релаксации приводит к затуханию амплитуды ФЭ [115].

## 2.2 Тонкая структура экситонов, трионов и правила отбора

В предыдущем разделе был приведен анализ когерентной динамики ансамбля ДС систем. Для корректного применения теории и описания экспериментально наблюдаемого сигнала ФЭ от экситонных и трионных ансамблей необходима расширенная модель, учитывающая тонкую структуру экситонов и трионов, а также правила отбора для оптических переходов между состояниями.

Структура энергетических уровней экситонов и трионов, а также правила отбора определяются симметрией валентной зоны и зоны проводимости. Ветви зон, происходящие из атомных орбиталей, имеют определенную симметрию и характеризуются соответствующим орбитальным моментом, как показано на рисунке 14(a). Так в GaAs в Г точке валентная зона имеет 3 ветви, которые относятся к симметрии *p*-типа, то есть их орбитальное квантовое число l = 1, а зона проводимости обладает симметрией s-типа, поэтому ее орбитальный момент l = 0. С учетом собственного момента - спина электронов s = 1/2 квантовое число полного момента (также называемого спином) пробегает значения j = |l - s| . l + s и для каждого полного момента j имеются 2j+1 проекций  $j_z = -j_{..} + j_{..}$  Поэтому полный момент электрона в зоне проводимости j = s = 1/2 (т.к. l = 0), а в валентных зонах j = 1/2 и j = 3/2. Спин-орбитальное взаимодействие отщепляет валентную зону с j = 1/2, которая поэтому называется спин-отщепленной, а подзоны с j = 3/2 и проекциями  $j_z = \pm 3/2$  и  $j_z = \pm 1/2$  называются подзонами тяжелой (HH) и легкой (LH) дырки соответственно. В объемном материале эти две зоны вырождены, но в КЯ и КТ вырождение снимается из-за нарушения трансляционной симметрии. Более подробное описание тонкой структуры приведено, например, в монографии [139].

Для построения модели экситона в КЯ необходимо рассмотреть разрешенные оптические переходы между электронными состояниями, которые определяются в том числе и законом сохранения проекции момента импульса. Ограничимся переходами из НН подзоны в зону проводимости. Как показано на рисунке 14(b), при поглощении фотона света циркулярной поляризации  $\sigma \pm c$ проекцией  $s_z = \pm 1$  возможны переходы из состояний валентной зоны  $j_z = \mp 3/2$ 



Рис. 14: (a) Схематическое изображенное зонной структуры GaAs при условии расщепления НН и LH подзон. (b) - разрешенные оптические переходы между одноэлектронными уровнями.



Рис. 15: Энергетическая схема уровней и оптические переходы для экситона (a) и отрицательно заряженного триона (b).

в состояния зоны проводимости  $j_z = \mp 1/2$ , при этом в валентной зоне образуется дырка с противоположной проекцией  $j_z = \pm 3/2$ .

Рассмотрим случай нелегированной структуры. Основное состояние кристалла соответствует полностью заполненной валентной зоне и пустой зоне проводимости. Экситон, состоящий из электрон-дырочной пары с противоположно направленными спинами, обладает проекцией  $J_z = \pm 1$  и называется светлым, так как оптический переход в такое состояние разрешен. Экситоны, чьи электрон и дырка имеют сонаправленные спины, имеют проекцию  $J_z = \pm 2$  и называются темными, поскольку прямые оптические переходы в них запрещены. В итоге для нейтральных экситонов можно составить схему V-типа с одним общим основным состоянием и четырьмя возбужденными, как показано на Рис. 15(а).

Второй случай - легированная структура со свободными носителями, электронами. В качестве основного состояния рассматривается неспаренный электрон в зоне проводимости, который имеет двухкратное спиновое вырождение  $|\pm 1/2\rangle$ , как показано на рисунке 15(b). При оптическом переходе образуется отрицательно заряженный трион - два электрона в зоне проводимости с противоположными спинами (синглетное состояние) и дырка в валентной зоне с итоговым спином триона  $J_z = \pm 3/2$ , равным спину дырки. В итоге трионные состояния можно описать с помощью четырехуровневой схемы.

Главы 3 и 4 диссертации посвящены исследованию квантовых ям на основе ZnO и GaN. Данные структуры имеют кристаллическую структуру типа вюрцита. Зона проводимости образуется из атомных орбиталей *s*-типа, а валентная зона из орбиталей *p*-типа, которая расщепляется на три подзоны, именуемые A, B и C [140]. Порядок подзон и их симметрия долгое время остается предметом дискуссий [41, 140—142]. Однако, правила отбора разрешают дипольные переходы из подзон A и B в зону проводимости при возбуждении светом, вектор напряженности которого перпендикулярен оси роста кристалла  $\vec{E} \perp \vec{c}$ . Эти рассуждения позволяют нам моделировать экситонный ансамбль в ZnO и GaN схемой V-типа, а трионы - четырехуровневой схемой, аналогично случаю GaAs.

Таким образом путем увеличения количества состояний приведенный выше подход может быть использован для моделирования сигнала ФЭ от ансамблей экситонов и трионов. Данные квазичастицы, описываемые с помощью четырех- и пятиуровневых схем, соответственно, имеют отличающиеся правила отбора. Поэтому теоретический анализ предсказывает, что сигнал ФЭ от экситонов и трионов по-разному зависит от поляризационной конфигурации возбуждения [122, 135]. В частности, при возбуждении экситонов парой линейно поляризованных импульсов, угол между плоскостями поляризаций которых есть  $\varphi$ , сигнал  $\Phi \Im$  будет также линейно поляризован и коллинеарен второму импульсу, а модуль сигнала зависит от  $\varphi$  как  $\cos(\varphi)$ . В случае трионов при аналогичном возбуждении плоскость линейной поляризации ФЭ поворачивается на угол  $2\varphi$ , а модуль остается неизменным. Именно такие поляриметрические зависимости сигнала ФЭ были получены в ходе экспериментальных исследований экситонных и трионных ансамблей [122, 135], что позволяет в будущем использовать подобные измерения для определения энергетической схемы исследуемых квазичастиц.

### 2.3 Спиновые эффекты в фотонном эхе

Принципиально новые эффекты возникают при рассмотрении протоколов спин-зависимого ФЭ [127, 128]. Приложение поперечного магнитного поля относительно оптической оси (геометрия Фохта) вызывает прецессию спинов электрона и дырки на Ларморовской частоте, что приводит к смешиванию состояний. Согласно [143] полный спин-Гамильтониан для экситона есть сумма членов, отвечающих Зеемановскому расщеплению электрона  $H_e$  и тяжелой дырки  $H_h$  в магнитном поле, а также обменному взаимодействию между электроном и дыркой  $H_{e-h}$ :

$$H_e = \mu_B \sum_{i=x,y,z} g_{e,i} S_{e,i} B_i \tag{31}$$

$$H_h = -2\mu_B \sum_{i=x,y,z} (k_i J_{h,i} + q_i J_{h,i}^3) B_i$$
(32)

$$H_{e-h} = -\sum_{i=x,y,z} a_i S_{e,i} J_{h,i} + b_i S_{e,i} J_{h,i}^3$$
(33)

Здесь  $S_i, J_i$  - операторы проекции спина электрона и дырки,  $g_{e,i}$  - компоненты электронного g-фактора,  $k_i, q_i$  - константы Зеемановского расщепления дырки,  $a_i, b_i$  - константы спин-спинового взаимодействия. Так как в КЯ НН-подзона отщеплена от LH-подзоны, то для НН состояний можно сопоставить эффективный оператор  $\tilde{S}_h$  [143], и полный спин-гамильтониан приобретет вид:

$$H_{Z} = \sum_{i=x,y,z} \mu_{b} (g_{e,i} S_{e,i} - g_{h,i} \widetilde{S}_{h,i}) B_{i} - c_{i} S_{e,i} \widetilde{S}_{h,i}, \qquad (34)$$

$$g_{h,x} = 3q_x, g_{h,y} = -g_{h,x}, g_{h,z} = 6k_z + \frac{27}{2}q_z, c_x = \frac{3}{2}b_x, c_y = -\frac{3}{2}b_y, c_z = 3a_z + \frac{27}{4}b_z.$$
(35)

В базисе экситонных состояний  $\{0,+1;-1;+2;-2\}$  при  $\vec{B} = (B_x,0,0)$   $\hat{H}_Z$ имеет вид:

$$\hat{H}_{Z} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \delta_{0}/\hbar & \delta_{1}/\hbar & \omega_{e} & \omega_{h} \\ 0 & \delta_{1}/\hbar & \delta_{0}/\hbar & \omega_{h} & \omega_{e} \\ 0 & \omega_{e} & \omega_{h} & -\delta_{0}/\hbar & \delta_{2}/\hbar \\ 0 & \omega_{h} & \omega_{e} & \delta_{2}/\hbar & -\delta_{0}/\hbar \end{pmatrix}$$
(36)  
$$\omega_{e,h} = \frac{g_{e,h}\mu_{b}B_{x}}{\hbar}, \ \delta_{0} = c_{z}/2, \ \delta_{1} = (c_{x} + c_{y})/2, \ \delta_{2} = (c_{x} - c_{y})/2$$
(37)

В протоколе спин-зависимого фотонного эха в поперечном магнитном поле данный вклад в полный гамильтониан учитывается между действием оптических импульсов во время свободной прецессии, который приводит к возникновению осцилляций сигнала ФЭ. Подобный расчет был произведен для экситонов [136], а также были рассмотрены протоколы двух- и трехимпульсного спин-зависимого ФЭ от ансамбля трионов, результаты которых согласуются с экспериментальными данными [127—129, 131].

В итоге, мы показали, как применив формализм матрицы плотности, можно определить когерентную эволюцию ансамбля ДС в протоколе ФЭ. Далее перейдем к описанию экспериментальных методик детектирования сигнала ФЭ, позволяющих использовать описанный теоретический аппарат для исследования когерентной динамики экситонов и трионов в наноструктурах.

# 2.4 Детектирование пикосекундного фотонного эха с временным разрешением

Для получения информации о сверхбыстрой оптической когерентной динамике экситонных и трионных ансамблей в настоящей Диссертации использовалась методика вырожденного ЧВС и ФЭ с пикосекундным временным разрешением. Обзору исследований данным методом посвящен раздел 1.3, а моделирование протокола ФЭ представлено в разделе 2.1.4.

В качестве объекта исследования во всех последующих главах фигурируют полупроводниковые наноструктуры с КЯ первого типа, представляющие собой активные тонкие оптические слои с ярко выраженными экситонными и трионными резонансами. Детальное описание образцов будет приведено в сле-



дующих экспериментальных главах.

Рис. 16: Установка по измерению ЧВС с временным разрешением с помощью оптического гетеродинирования.

Для проведения исследований, описанных в главе 5, автором диссертации была построена экспериментальная установка по наблюдению вырожденного ЧВС в Санкт-Петербургском государственном университете (СПбГУ) [144]. Схема основных узлов установки изображена на рисунке 16. Установка была собрана по аналогии с действующей на тот момент установкой, реализованной в Техническом Университете Дортмунда, Германия (TU Dortmund) в лаборатории проф. М. Байера (М. Bayer). На ней автором были получены экспериментальные результаты, представленные в главах 3, 4. Там же будут показаны некоторые отличия в используемых на тот момент версиях установки.

Рассмотрим схему на рисунке 16. Описание установки приведено в работе соискателя [144]. Все исследования проводились при гелиевых температурах. Охлаждение системы до единиц градусов Кельвина позволяет избежать дополнительной дефазировки экситонов из-за экситон-фононного рассеяния. Для этого образец (Sample) помещается в жидкий гелий внутри шахты гелиевого криостата замкнутого цикла (Cryostat) и охлаждается до температуры T = 1.5 К при помощи откачки шахты. Оптическое возбуждение образца проводится с помощью узко-спектральных лазерных импульсов длительностью около 3 пс, излучаемых перестраиваемым титан-сапфировым лазером (Ti:Sapphire Laser) с частотой повторения импульсов  $f_{Laser} = 80.82$  МГц. Благодаря узкой спектральной ширине импульсов около 1 мэВ (рисунок 17(a)), по сравнению с характерной энергией связи триона и биэкситона, мы можем изолированно изучать определенный ансамбль квазичастиц, не возбуждая при этом другие ансамбли, спектрально находящиеся в окрестности.

Лазерный пучок попадает на последовательность светоделительных кубов (BS) и расщепляется на три отдельных оптических пути, обозначенные как первый (1), второй (2) и опорный (Ref). Дополнительно малая часть излучения отщеплялась для контролирования спектра лазера с помощью спектрометра (Spectrometer) с линейным детектором на основе прибора с зарядовой связью. С помощью ретрорефлекторов (RR), установленных на моторизированных оптических линиях задержки (DL), было реализовано управление временной задержкой между импульсами 1-2  $\tau_{12}$  и задержкой опорного импульса относительного первого  $au_{Ref}$ . Временная задержка может быть выставлена в диапазоне 0-2000 пс с шагом 0.1 пс. Импульсы 1 и 2 с помощью плоских зеркал (M) направляются на сферическое зеркало с фокусным расстоянием f = 70 см, после которого лучи направляются на образец с проекциями волновых векторов вдоль плоскости образца  $k_1$  и  $k_2$  и фокусируются в пятно размером около 200 мкм. Направления векторов близки к нормали к плоскости образца (около  $3-4^{\circ}$ ), а разностный угол между ними составляет менее 1° (рисунок 16). Когерентный отклик от образца (Signal) состоит из нескольких составляющих – отраженных 1-го и 2-го импульсов с проекциями  $\boldsymbol{k}_1$  и  $\boldsymbol{k}_2$  и отклика ЧВС с проекцией  $k_{FWM} = 2k_2 - k_1$ . После коллимирования тем же сферическим зеркалом эти компоненты следуют параллельно друг другу на ретрорефлектор, сдвиг которого позволяет направить ту или иную компоненту сигнала на неполяризующий светоделитель, где сигнал смешивается с опорным импульсом. Пара смешанных лучей, выходящих из светоделителя, фокусируется на фотодиоды балансного фотоприемника.

Детектирование сигнала реализовано по принципу интерферометрического оптического гетеродинирования, принципы которого описаны в работе [40]. Суть методики заключается в смешивании слабого полезного сигнала с опорным импульсом, несущие частоты которых имеют отстройку в мегагерцовом диапазоне. Для этого в схему в каналы 1 и Ref встроены синхронизированные акусто-оптические модуляторы (AOM) с бегущей волной, частота которых задается независимо в диапазоне 75-85 МГц с помощью драйвера (Driver). В результате дифракции первого пучка в -1 порядок и опорного пучка в +1 порядок оптические частоты пучков сдвинуты соответственно на  $f_1 = -81$  МГц и  $f_{Ref} = +80$  МГц соответственно. Следовательно частота сигнала ЧВС имеет оптический сдвиг  $f_{FWM} = -f_1 = +81$  МГц. В результате смешивания сигнала ЧСВ с опорным импульсом фототок на каждом из каналов приемника состоит из постоянной компоненты, пропорциональной сумме интенсивностей сигнала и опорного импульса, и интерференционной компоненты, осциллирующей на разностной частоте  $\Delta f = f_{FWM} - f_{Ref} = 1$  МГц. Применение балансной схемы детектирования приводит к вычитанию постоянных компонент и удваиванию интерференционного полезного сигнала  $I_{Det}$ :

$$I_{det} \propto \int_{T_{Det}} [e^{i\Delta ft} E_{FWM}(t) E^*_{Ref}(t - \tau_{Ref}) + c.c.] dt, \qquad (38)$$

где  $T_{Det}$  - период усреднения сигнала фотоприемником, определяемый полосой пропускания частот,  $E_{FWM}(t)$  - огибающая сигнала ЧВС,  $E_{Ref}(t - \tau_{Ref})$  огибающая опорного импульса, задержанного на  $\tau_{Ref}$  относительно первого импульса. Так как  $\Delta f \ll 1/T_{Det}$ , модуляционный множитель на данном масштабе времен играет роль медленно меняющейся функции, которую можно вынести из-под интегрирования, а интеграл представляет собой кросс-корреляцию между сигналом ЧВС и опорным импульсом.

Далее сигнал подается на вход высокочастотного синхронного детектора (СД) (Fast lock-in), опорная частота которого задается драйвером AOMoв  $\Delta f$ . Так как установка не обладает полноценной интерференционной стабильностью, квадратуры синхронного детектирования X, Y испытывают существенные флуктуации. Поэтому с выхода высокочастотного СД снимается сигнал модуля  $R = \sqrt{X^2 + Y^2}$ . Для дальнейшего повышения чувствительности измерений первый пучок был дополнительно прорежен механическим модулятором (Chopper) на частоте 1 КГц. На этой частоте производится повторное синхронное детектирование низкочастотным СД (Slow lock-in). В итоге при сканировании задержки опорного импульса  $\tau_{Ref}$  обеспечивается высокочувствительное безфоновое детектирование модуля кросс-корреляции между амплитудой сигнала и опорным импульсом.

Так как параллельно сигналу ЧВС следуют отраженные возбуждающие импульсы, то параллельным сдвигом ретрорефлектора можно измерить кросс-



Рис. 17: Спектр (а) и автокорреляционная функция (b) лазерного импульса. Красным цветом изображена подгонка Гауссовыми кривыми.

корреляцию между каждым отраженным импульсом и опорным импульсом. Частота детектирования высокочастотным СД равна боковой частоте  $|f_{Ref} - f_{1} - 2f_{Laser}|$  и  $|f_{Ref} - f_{Laser}|$  для детектирования отраженного первого и второго импульсов соответственно. При возбуждении вне резонанса отраженный сигнал будет иметь только компоненту нерезонансного отражения от гладкой поверхности образца, поэтому измеряемый сигнал соответствует автокорреляционной функции исходных импульсов. Подобные измерения позволяют откалибровать временные задержки между возбуждающими импульсами и определить длительность импульсов, как показано на рисунке 17(b).



Рис. 18: (a) Временной профиль двухимпульсного (первичного) ФЭ от ансамбля экситонов в InGaAs KЯ толщиной 3 нм с изображением возбуждающих импульсов. (b) Кинетика затухания амплитуды первичного ФЭ с ростом задержки  $\tau_{12}$ .

На рисунке 18(а) представлен временной профиль модуля амплитуды двухимпульсного ФЭ от ансамбля экситонов. Профиль имеет форму Гауссового

колокола и соответствует классическому ФЭ от неоднородного ансамбля. Так как длительность ФЭ существенно больше длительности опорного импульса, мы можем считать, что измеряемый профиль отражает близкое к истинному временное поведение ФЭ, а уширением вследствие свертки с опорным импульсом в данном случае пренебречь. Основополагающий тип измерения настоящей работы представлен на рисунке 18(b) - одновременное сканирование задержки  $au_{12}$  и  $au_{Ref}$  и детектирование экспоненциального затухания амплитуды пика  $\Phi \Im$  $P_{\rm PE} \propto e^{-2\tau_{12}/T_2}$ , измеренного при  $\tau_{Ref} = 2\tau_{12}$ . Так как сигнал двухимпульсного  $\Phi \Im$  возникает в момент  $t = 2\tau_{12}$ , шаг сканирования задержки опорного импульса  $\tau_{Ref}$  в 2 раза больше шага сканирования задержки  $\tau_{12}$ . При измерении трехимпульсного  $\Phi \Theta$ , эхо-сигнал возникает в момент времени  $t = 2\tau_{12} + \tau_{23}$ , поэтому шаг сканирования  $\tau_{Ref}$  совпадает с шагом для  $\tau_{23}$ . Экспериментальная установка имеет большое количество степеней свободы - пары скрещенных призм Глана (Gl) с полуволновой пластинкой ( $\lambda/2$ ) между ними позволяют управлять независимо мощностью импульсов. Криостат имеет сверхпроводящие магниты, производящие магнитное поле до B = 6 T, которое применялось для измерений спин-зависимого ФЭ. Вектор магнитного поля направлен горизонтально вдоль плоскости образца перпендикулярно направлению света (рисунок 16), что соответствует геометрии Фохта. Далее мы будем обозначать горизонтальное направление вдоль вектора поля индексом Н, а перпендикулярное ему вертикальное направление - V.

Экспериментальная установка позволяет с помощью набора волновых пластинок, часть из которых установлены в моторизированные вращатели (R), задавать линейные поляризации возбуждения и детектирования произвольного направления в плоскости (плоскость (H,V)), перпендикулярной волновому вектору. Это позволяет измерять поляриметрические зависимости амплитуды первичного ФЭ от экситонного и трионного ансамблей в геометриях  $H\varphi \rightarrow H$  и  $H\varphi \rightarrow V$ , где H – линейная поляризация, горизонтально ориентированная относительно лабораторной системы отсчета, V – вертикально ориентированная линейная поляризация,  $\varphi$  – линейная поляризация в плоскости (H,V), угол наклона которой относительно горизонтального направления  $\varphi$  плавно сканируется. Первые два индекса обозначают поляризацию первого и второго накачивающих импульсов, последний индекс - поляризацию, в которой проводилось детектирование сигнала. Такие измерения позволяют определить структуру энергетических уровней исследуемого образца, как было показано в предыдущей главе. Также измерения в нескольких поляризационных конфигурациях необходимы для получения информации о *g*-факторе экситона в эксперименте по спинзависимому ФЭ.

Все эксперименты проводились в автоматизированном режиме. Для этого было написано программное обеспечение, позволяющее детектировать сигнал с СД, измерять характеристики возбуждающего лазерного импульса - длина волны, спектральная ширина; управлять и сканировать такими степенями свободы, как мощность и поляризация возбуждающих импульсов, задержки  $\tau_{12}$ ,  $\tau_{Ref}$ .

## Глава 3. Фотонное эхо от экситонов и трионов в квантовой яме ZnO/(Zn,Mg)O

Глава посвящена экспериментальному исследованию когерентной оптической динамики экситонов и трионов в структуре с КЯ ZnO/(Zn,Mg)O. Глава содержит краткое введение, описание образца и оригинальную экспериментальную часть. Приведен анализ полученных экспериментальных данных и вывод по главе.

### 3.1 Введение к главе

Исторически так сложилось, что наноструктуры на основе арсенида галлия были первыми исследованы в направлении когерентной оптической динамики. Однако, они имеют существенное ограничение - экситонные эффекты наблюдаются только при гелиевых температурах в силу относительно малой величины энергии связи экситона порядка единиц мэВ. Структуры на основе оксида цинка ZnO более привлекательны с этой точки зрения, так как энергия связи экситона около 60 мэВ позволяет наблюдать экситонные эффекты при комнатной температуре [140]. Благодаря развитию технологий роста наноструктур на основе оксида цинка удалось создать ультрафиолетовые источники лазерного излучения, в том числе и поверхностно-излучающий лазеры с вертикальным резонатором [145], светодиоды [146], прототипы солнечных батарей [147] другие устройства оптоэлектроники и спинтроники [148]. Среди множества структур на базе ZnO особый интерес представляют квантовые ямы (KЯ), параметры которых могут быть заданы в зависимости от цели применения [149, 150]. Оптические свойства КЯ определяются не только нейтральными экситонами (Х), но и их различными комплексами, в частности, трионами (Т), которые наблюдаются при условии наличия резидентных носителей заряда. Магнетооптические методики были применены для обнаружения и исследования трионов в КЯ ZnO/(Zn,Mg)O [41, 151]. Методики четырехволнового смешения и фотонного эха были недавно успешно применены для изучения пикосекундной когерентной динамики экситонов, локализованных на нейтральных донорах, в эпитаксиальных слоях ZnO при гелиевых температурах [101]. Так же были определены однородная ширина и неоднородное уширение экситонного перехода в объемном ZnO [152] и были исследованы когерентные свойства биэкситонов в

КЯ ZnO/(Zn,Mg)О при комнатной температуре [153].

Данная глава посвящена применению методики ЧВС для изучения когерентной оптической динамики экситонов и трионов в КЯ ZnO/(Zn,Mg)O. Проведенные исследования позволили продвинуться в понимании энергетической структуры экситонных состояний в таких квантовых ямах, определить времена фазовой и энергетической релаксации для экситонов и трионов, выявить характеры влияния локализации квазичастиц и фононного рассеяния на дефазировку экситонных ансамблей. Большинство результатов главы опубликовано в работе соискателя [154] и легло в основу выпускной квалификационной работы соискателя по результатам программы Аспирантуры в СПбГУ.

### 3.2 Исследуемый образец



Рис. 19: Структура образца ZMO1036 с пятью КЯ ZnO/(ZnMg)O.

В качестве образца была выбрана полупроводниковая гетероструктура с пятью KЯ (MKЯ) ZnO/(ZnMg)O, схема которого представлена на рисунке 19. Образец (ZMO1036) был выращен на сапфировой подложке в направлении кристаллографической оси С методом молекулярно-пучковой эпитаксии с радиальным источником. Образец состоит из нуклеационного слоя MgO толщиной 2 нм, полумикронного буферного слоя (Zn,Mg)O, последовательно расположенных пяти KЯ ZnO толщиной 3.5 нм с барьерами (Zn,Mg)O толщиной 8.5 нм, и верхнего слоя (Zn,Mg)O. Для образования резидентных электронов область KЯ была пролегирована  $\delta$ -слоями сурьмы [155], симметрично расположенными внутри барьеров на расстоянии 4 нм от первой и последней KЯ. Так как исходно оксид цинка сам по себе является полупроводником n-типа, наличие резидентных электронов приводит к появлению трионных спектральных линий [41]. Применение дельта-легирования в исследуемой структуре привело к увеличению концентрации резидентных электронов и соответственно более интенсивному сигналу ЧВС от трионного ансамбля. Мы оцениваем уровень легирования внутри слоев КЯ порядка  $2 \times 10^{12}$  cm<sup>-2</sup>. Образец был выращен на подложке при температуре 300 ° С. Был произведен дополнительный отжиг буферного слоя в течение 5 минут при температуре 590 ° С перед осаждением КЯ. Содержание магния в буферном слое и в барьерах составляет x = 0.09, что ведет к возникновению малых встроенных электрических полей [150].

#### PL intensity (arb. units) Absorption (arb. units) T = 2KLaser h 1 11 PI Absorption 0 0 3.38 3.36 3.40 3.42 Energy (eV)

### 3.3 Характеризация образца

Рис. 20: Спектр фотолюминесценции (синий) и поглощения (красный) в области экситонных и трионных резонансов, измеренные при T = 2 К. Резонансы отмечены вертикальными стрелками. Типичный спектр лазерного импульса, использованного для измерений ФЭ, изображен пунктирной кривой.

Базовые оптические свойства структуры были проанализированы с помощью методик ФЛ и поглощения, спектры которых приведены на рисунке 20. Измерения проводились аналогично процедуре описанной в работе [41], а основы ФЛ приведены в первой главе диссертации. На спектрах можно заметить несколько особенностей, схожих с теми, что были опубликованы в недавних исследованиях квантовых ям ZnO/(Zn,Mg)O магнето-оптическими методиками [41, 42]. Пик на энергии 3.375 эВ в спектре ФЛ соответствует рекомбинации триона  $T_A$ . В спектре поглощения этот переход проявляется как плечо на 3.381 эВ. Стоксов сдвиг порядка 6 мэВ и величина полуширины пика ФЛ 9 мэВ указывают на существенное неоднородное уширение трионного резонанса  $T_A$  в силу локализации. Спектр поглощения также содержит две особенности, не наблюдаемые в спектре фотолюминесценции. Они расположены на 3.395 и 3.405 эВ и соответствуют экситонам A  $(X_A)$  и B  $(X_B)$ .

### 3.4 Фотонное эхо со спектральным разрешением



Рис. 21: Схема оптического возбуждения образца и регистрации ЧВС.

Для исследования когерентной оптической динамики экситонов и трионов в образце была применена методика  $\Phi$ Э с пикосекундным временным разрешением. Использованная экспериментальная установка аналогична приведенной в предыдущей главе 2.4. Основные отличия следующие. Так как энергии экситонных и трионных переходов порядка 3.4 эВ, для резонансного возбуждения использовалась вторая гармоника импульсного излучения титан-сапфирового лазера с частотой повторения  $f_{Laser} = 75.75$  МГц. На выходе из кристалла удвоителя импульсы ультрафиолетового диапазона имеют длительность около 1.3 пс, спектр которых приведен на рисунке 20. Для измерения трехимпульсного стимулированного (СФЭ) была внедрена дополнительная линия задержки для управления временной задержкой третьего возбуждающего импульса относительного первого импульса  $\tau_{13}$ . Третий импульс смешивался со вторым и попадал на образец с тем же волновым вектором  $k_3 = k_2$ , как показано на рисунке 21. Сигнал ЧВС детектировался в геометрии на пропускание ввиду прозрачности подложки.

При возбуждении периодической структуры с КЯ (МКЯ от английского названия multiple quantum well (MQW)) ZnO/(Zn,Mg)O в области переходов  $X_A$  и  $T_A$  ЧВС имеет форму ФЭ. На рисунке 22 показан типичный временной профиль ЧВС, измеренный при энергии возбуждения E = 3.378 эВ при возбуждении последовательностью из трех лазерных импульсов с задержками  $\tau_{12} =$ 



Рис. 22: Временной профиль ЧВС при возбуждении системы последовательностью из трех накачивающих импульсов, разделенных во времени.

26.7 пс и  $\tau_{23} = 13.3$  пс. Сигнал состоит из трех отдельных пиков ФЭ, возникающих в ожидаемые моменты времени: PE<sub>12</sub> при  $\tau_{Ref} = 2\tau_{12} = 53.4$  пс и PE<sub>13</sub> при  $\tau_{Ref} = 2(\tau_{12} + \tau_{23}) = 80$  пс – двухимпульсное первичное ФЭ, произведенное последовательностью импульсов 1-2 и 1-3; SPE при  $\tau_{Ref} = \tau_{23} + 2\tau_{12} = 66.7$  пс – трехимпульсное СФЭ, произведенное всеми тремя импульсами.



Рис. 23: Серия временных профилей сигнала двухимпульсного  $\Phi \Theta$  от ансамбля трионов  $T_A$  (a) и экситонов  $X_A$  (b) при различной задержке  $\tau_{12}$ .

В соответствии с приведенными в главе 2 рассуждениями увеличение задержки  $\tau_{12}$  в двухимпульсном эксперименте приводит в экспоненциальному затуханию амплитуды ФЭ, откуда мы можем извлечь время необратимой фазовой релаксации состояния  $T_2$ , определяющее величину однородной ширины перехода. Рисунок 23(a) и 23(b) демонстрируют затухание профиля ФЭ от ансамбля трионов  $T_A$ , измеренного при E = 3.378 эВ, и экситонов  $X_A$ , измеренного при E = 3.394 эВ, при сканировании задержки  $\tau_{12}$ . Из этих данных мы получаем



 $T_2 = 30$  пс и 4.5 пс для триона  $T_A$  и экситона  $X_A$  соответственно.

Рис. 24: Зависимость амплитуды спонтанного фотонного эха от ансамбля трионов  $T_A$  от амплитуд первого и второго накачивающих импульсов. Пунктирные линии соответствуют линейной (a) и параболической (b) зависимости.

Было проверено, что применение максимально доступной плотности энергии возбуждающих импульсов (200 нДж/см<sup>2</sup>) не приводит к выходу из режима измерений  $\chi^{(3)}$  и не вызывает существенной дополнительной дефазировки, индуцированной накачкой. На рисунке 24(а) и 24(b) показаны зависимости амплитуды ФЭ от трионов  $T_A$  как функции амплитуд (квадратного корня из энергии) первого и второго возбуждающих импульсов при  $\tau_{12} = 26.7$  пс. Амплитуда эха ожидаемо растет линейным (рисунок 24(а)) и параболическим образом (рисунок 24(b)), что соответствует режиму измерения  $\chi^{(3)}$ .

Кинетики первичного  $\Phi \Im$  и С $\Phi \Im$  были измерены со спектральным разрешением в области экситонных и трионных оптических переходов. Разбор подобных исследований наноструктур на основе GaAs [104] приведен в главе 1. В ходе измерений центральную длину волны перестраиваемого лазера была зафиксирована, а задержки  $\tau_{12}$  и  $\tau_{23}$  сканировались. Использование пикосекундных лазерных импульсов и точная подстройка длины волны лазера в отличие от фемтосекундной техники [114] позволяют детально изучить когерентную динамику квазичастиц, изолированно возбуждая интересующий ансамбль.

Панорамная картина спектральной зависимости кинетики  $\Phi$ Э, записанная в области энергии оптических переходов  $X_A$ ,  $X_B$  и  $T_A$ ,  $T_B$  с шагом около 1 мэВ, показана на рисунке 25. Эти данные наглядно проявляют разницу в динамике частиц двух типов. Заметим, что динамика квазичастиц  $X_A$  и  $T_A$  имеет долгоживущих характер в отличие от квазичастиц  $X_B$  и  $T_B$ . Сигнал в области последних существенно более интенсивный (см. логарифмический масштаб по



Рис. 25: Карта амплитуды первичного ФЭ, измеренная как функция энергии *E* и задержки  $\tau_{12}$ . Нижняя панель - спектральная зависимость времени  $T_2$  и  $T_1$ . Вспомогательный спектр фотолюминесценции изображен сплошной кривой на левой нижней панели.

цвету), но короткоживущий. Когерентность экситонов  $X_B$  и трионов  $T_B$  затухает в субпикосекундном диапазоне, поэтому временной профиль аппаратно ограничен длительностью лазерных импульсов. Кинетики затухания первичного ФЭ от трионов  $T_A$ , отдельно показанные на рисунке 26(а), имеют практически моноэкспоненциальный характер затухания при  $\tau_{12} > 10$  пс. В кривых затухания для спектральной области выше 3.376 эВ можно заметить всплеск сигнала в первые несколько пикосекунд записи, связанный со вкладом от трионов  $T_B$ . Аппроксимируя кинетику в разных участках спектра экспоненциальным затуханием, можно получить значения для величины  $T_2$  трионов  $T_A$  и экситонов  $X_A$ . Эти величины приведены на нижней панели рисунка 25. Для обоих ансамблей наблюдается увеличение времени оптической когерентности при уменьшении энергии перехода. Максимально наблюдаемое время T<sub>2</sub> для трионов T<sub>A</sub> достигает 60 пс. Для экситонов  $X_A$  максимальное значение  $T_2$  составляет 4.5 пс, что существенно больше, чем T<sub>2</sub> свободных экситонов в эпитаксиальном слое ZnO, демонстрирующих фазовую релаксацию на субпикосекундном масштабе [101]. Одной из причин такого короткого времени когерентности экситонов может быть эффективное образование трионов из экситонов ввиду относительно



Рис. 26: (а) и (б) Кинетики затухания амплитуды сигнала первичного  $\Phi$ Э РЕ и СФЭ SPE, измеренные со спектральным разрешением в области трионного перехода  $T_A$ .

большой концентрации резидентных электронов. Данный факт также проявляется в слабом сигнале  $\Phi \Pi$  от экситонов  $X_A$ , который не различим в линейном масштабе на рисунке 20. Стоит заметить сильную разницу в поведении между трионами и экситонами двух типов A и B. Мы считаем, что данная разница в характере когерентной динамики связана с быстрой энергетической релаксацией из высокоэнергетических состояний подзоны B в низкоэнергетические состояния подзоны A.

Динамика населенности возбужденного состояния исследовалась методом трехимпульсного СФЭ. Для этого мы фиксировали задержку  $\tau_{12} = 13.3$  пс и сканировали задержку  $\tau_{23}$ , детектируя амплитуду сигнала на задержке  $\tau_{Ref} = 2\tau_{12}+\tau_{23}$ . Кинетика затухания населенности трионов  $T_A$  со спектральным разрешением представлена на рисунке 26 (б). Нельзя сказать, что эти кривые имеют строго моноэкспоненциальный спад, но возможно выделить быструю компоненту в начале и долгоживущий хвост. Аппроксимируя быстро затухающую часть экспоненциальным спадом вида  $P_{\rm PE} \propto e^{-\tau_{23}/T_1}$ , мы получили спектральную зависимость величины  $T_1$  для трионного перехода  $T_A$ , изображенную на нижней

левой панели рисунка 25. Видно, что время  $T_1$  растет с уменьшением энергии триона и достигает величины 102 пс. При этом соотношение  $T_2 \approx 0.5 \cdot T_1$  указывает на наличие дополнительных механизмов дефазировки, не связанных с энергетической релаксацией ансамбля. Из аппроксимации долгоживущей компоненты мы получили значения времени энергетической релаксации в диапазоне до 250 пс, что согласуется с величиной времени жизни состояния  $T_A$  200 пс, полученной ранее в аналогичной структуре с МКЯ ZnO/(Zn,Mg)O методом измерения ФЛ с временным разрешением [42].

### 3.5 Температурные измерения когерентной динамики

Температурные измерения ЧВС активно используются для изучения влияния фононов на дефазировку и энергетическую релаксацию экситонов и их комплексов [100, 101, 105, 156—159]. Мы провели серию экспериментов по детектированию кинетик затухания первичного ФЭ и СФЭ от трионов с энергией E = 3.376 эВ в зависимости от температуры образца в диапазоне T = 1.4 : 15 К. Кинетики показаны на рисунке 27(а) и (b), а извлеченные величины скорости необратимой фазовой релаксации  $\Gamma_2 = \hbar/T_2$ , энергетической релаксации  $\Gamma_1 = \hbar/T_1$  и чистой фазовой релаксации  $\Gamma_c = \Gamma_2 - \Gamma_1/2$  показаны на рисунке 27(с).

Во-первых, можно заметить, что динамика населенности слабо зависит от температуры вплоть то T = 10 K, при этом заметно монотонное падение амплитуды СФЭ при нагреве. Некоторое увеличение скорости релаксации населенности с ростом температуры может быть признаком процесса делокализации трионов с поглощением акустических фононов, как это наблюдалось ранее в квантовых ямах GaAs/AlGaAs [156, 157] и CdTe/CdMgTe [105, 158]. Стоит отметить, что в вышеупомянутых работах рассматривалось нелинейное увеличение полной скорости дефазировки  $\Gamma_2$ , а не отдельной компоненты  $\Gamma_1/2$ , соответствующей энергетической релаксации. Но процесс делокализации приводит к изменению населенности локализованных состояний, поэтому мы можем провести аналогию между полученными нами данными и опубликованными результатами.

По имеющимся экспериментальным данным сложно отличить линейный режим роста скорости  $\Gamma_2$  от нелинейного ввиду погрешности определения па-



Рис. 27: (a) и (b) Кинетики затухания амплитуды первичного  $\Phi \ni$  (PE) и С $\Phi \ni$  (SPE) от трионов, измеренные в спектральной области 3.376 эВ при различной температуре. (c) Температурная зависимость скорости фазовой релаксации  $\Gamma_2$  (квадраты), энергетической релаксации  $\Gamma_1$  (круги), и чистой фазовой релаксации  $\Gamma_c$  (треугольники). Пунктиром изображены линейные аппроксимации.

раметра затухания и температуры образца при T > 4.2 K, так как при таких температурах образец не погружен в жидкий гелий, а находится в парах гелия и имеет слабый тепловой контакт. Эти ограничения касаются и данных о чистой дефазировке  $\Gamma_c$ . Можно выделить линейный рост с коэффициентом  $\gamma \approx 2$  мкэB/K, связанный с рассеянием трионов на акустических фононах, и подставку  $\Gamma_d \approx 9$  мкэB, независящую от температуры, так что  $\Gamma_c = \Gamma_d + \gamma T$ . Линейная зависимость скорости дефазировки более характерна для свободных экситонных комплексов, чем для локализованных [105]. Вычисленный коэффициент  $\gamma$  оказался близок по значению к соответствующей величине, определенной недавно для экситонов, локализованных на нейтральном доноре  $D_0X_A$  в эпитаксиальном слое ZnO [101] (около 2 мкэB/K), но в последнем случае не наблюдалось не зависящей от температуры подставки  $\Gamma_d$ .

Для того, чтобы определить причину дополнительной дефазировки трионов на рисунке 28 приведены спектральные зависимости величин  $\Gamma_1$ ,  $\Gamma_2$  и  $\Gamma_c$ , вычисленные по данным, представленным на рисунке 25. Видно, что все скорости  $\Gamma_1$ ,  $\Gamma_c$  и суммарная  $\Gamma_2$  сильно растут при увеличении энергии трионов, то есть эффекты дефазировки и энергетической релаксации существенно зависят от локализации трионов. При T = 1.5 K вкладом упругого рассеяния на акустических фононах можно пренебречь ( $\gamma T \approx 3$  мкэВ). Поэтому можно сказать,



Рис. 28: Спектральная зависимость скоростей  $\Gamma_2$ ,  $\Gamma_1$  и  $\Gamma_c$ , извлеченных из данных рисунка 25. Серым цветом изображен спектр первичного ФЭ при  $\tau = 6.67$  пс, стрелкой обозначена точка спектра, в которой снимались температурные измерения.

что основной вклад в скорость чистой фазовой релаксации в данном случае вносит независящая от температуры компонента  $\Gamma_d$ .

### 3.6 Анализ экспериментальных результатов

Наблюдаемое монотонное увеличение скоростей Г<sub>1</sub> и Г<sub>2</sub> трионов и экситонов А типа с ростом энергии, а также наличие Стоксова сдвига между спектрами ФЛ и поглощения могут быть объяснены локализацией данных квазичастиц на флуктуациях потенциала КЯ. Такие флуктуации возникают, например, из-за вариации толщины КЯ, процентного состава барьеров и электрического поля, образующегося вследствие неоднородного распределения доноров в легирующем слое. Различная степень локализации частиц внутри неоднородно уширенного ансамбля может привести к разбросу силы осциллятора, с которой непосредственно связана скорость релаксации населенности Г<sub>1</sub>. В силу того, что энергия связи экситона и триона больше характерной величины энергии локализации, последняя влияет в большей степени на волновую функцию центра масс, чем на относительное движение электронов и дырок внутри экситона или триона [104]. Моделирование задачи локализации трионов пока что проводилось только в системе квантовых нитей [160]. В случае с локализованными экситонами в КЯ было обнаружено относительно слабое уменьшение силы осциллятора [161], которое не может обосновать столь драматичное изменение

времени  $T_1$ , приведенное на рисунке 28. Поэтому мы пришли к выводу, что причиной для такого изменения служит нерадиационная релаксация трионов внутри случайного потенциального рельефа с испусканием фононов.

Сильный рост скорости дефазировки  $\Gamma_d$  с увеличением энергии трионов  $T_A$  так же может быть объяснен локализацией трионов. Высокоэнергетичные трионы имеют слабую локализацию, либо не имеют ее вообще. Такие трионы могут испытывать упругое рассеяние на шероховатостях интерфейсов квантовой ямы. При таком рассеянии энергия триона сохраняется, но теряется информация об его фазе.

Дополнительно были проведены оценки влияния спектральной диффузии трионов внутри неоднородного ансамбля на фазовую и энергетическую релаксацию. Результаты данных измерений [154] показывают, что приблизительный вклад спектральной диффузии в скорость релаксации трионов, измеренный в середине спектральной линии,  $\Gamma_{SD}$  составляет около 5 мкэВ, что согласуется по порядку величины со изменением  $\Gamma_1$  внутри спектральной области, показанным на рисунке 28. Однако данный эффект не имеет сильного влияния на дефазировку трионов  $\Gamma_{SD}/2 \approx 2.5$  мкэВ в данном случае.

Схожее влияние локализации экситонов и трионов на когерентную динамику наблюдалось ранее в гетероструктурах различного состава [104, 157, 162]. Хотя недавнее исследование когерентной динамики экситонных комплексов в одиночной квантовой яме CdTe/CdMgTe показало противоположное уменьшение времени когерентности при уменьшении энергии экситонов, локализованных на нейтральном доноре  $D_0X$  [115]. Стоит отметить, что такого рода эффекты существенно зависят от технологии роста и конечной реализации гетероструктуры. Благодаря оптимизации параметров роста экситоны внутри квантовой ямы могут быть полностью или слабо локализованными, либо полностью делокализованными, и вклады разных механизмов дефазировки могут играть большую или меньшую роль и требуют подробного анализа в каждом отдельном случае.

### 3.7 Выводы

Применив технику двух- и трехимпульсного ФЭ с использованием узкоспектральных лазерных импульсов, нами была исследована пикосекундная ко-
герентная динамика экситонов и трионов в МКЯ ZnO/(Zn,Mg)O. Экспериментально была показана разница в динамике экситонов и трионов двух типов A и В. Субпикосекундная динамика частиц типа В определяется быстрой релаксацией в состояния типа A. Нам удалось продемонстрировать сильное уменьшение скоростей чистовой фазовой и энергетической релаксации с ростом степени локализации трионов  $T_A$  при низкой температуре. Причинами этого являются уменьшение влияния упругого рассеяния на неровностях интерфейса квантовой ямы и безызлучательной релаксации, а также спектральной диффузии внутри неоднородного трионного ансамбля, сооответственно. Кроме того, более локализованные частицы меньше испытывают многочастичные взаимодействия, однако мы не обнаружили существенного эффекта дефазировки, индуцированной возбуждением, в имеющемся диапазоне мощности возбуждения.

# Глава 4. Долгоживущее фотонное эхо от экситонов в периодической структуре с квантовыми ямами (In,Ga)N/GaN

Глава посвящена исследованию когерентной оптической динамики экситонов в структуре со ста квантовыми ямами (In,Ga)N/GaN методом двухимпульсного и трехимпульсного  $\Phi$ Э в ультрафиолетовом спектральном диапазоне. Глава содержит краткое введение, описание исследуемого образца, результаты оригинальных исследований спектроскопии  $\Phi$ Л и  $\Phi$ Э в области экситонного перехода и измерений кинетик затухания амплитуды  $\Phi$ Э при различной температуре. В конце главы приведен анализ результатов, указывающий на сильную локализацию экситонов на флуктуациях структуры, подобно локализации частиц в квантовых точках. Большинство результатов главы опубликовано в работе соискателя [163].

### 4.1 Введение к главе

Наноструктуры на основе нитрида галлия близки по оптическим свойствам вышеупомянутым системам на основе оксида цинка. Благодаря большой величине энергии связи экситона KЯ (In,Ga)N/GaN активно используются в оптоэлектронике, например, в качестве базы для ультрафиолетовых светодиодов и лазеров [164]. Однако, качество роста структур, как и в случае оксида цинка, на сегодняшний момент несовершенно, и структуры подвержены существенному беспорядку состава вдоль плоскости ямы, что естественно влияет на оптические и транспортные свойства оптических возбужденных состояний [164—167].

Основной причиной беспорядка является термодинамическое стремление к разделению фаз InN-GaN в процессе роста структуры [167]. Характер беспорядка существенного зависит от условий роста структуры [168, 169], и такие процедуры, как увеличение температуры роста [168], примешивание водорода [170], применение отжига структуры [171] или прерывания роста [172] могут быть использованы для управления процессом разделения фаз. Наличие флуктуаций приводит к пространственной локализации экситонов в окрестностях деформаций [165, 166], которая во-первых приводит к неоднородному уширению экситонного резонанса, а во-вторых к уменьшению силы осциллятора экситонов в результате воздействия неоднородных локальных электрических полей. Кроме того, локализованные состояния менее подвержены неупругому рассеянию и нерадиационной релаксации на таких структурных дефектах, как дислокации. Учитывая упомянутые особенности, локализованные экситоны в КЯ (In,Ga)N/GaN могут обладать долгим временем фазовой релаксации.

Для подробного анализа влияния флуктуаций состава на когерентные свойства экситонов в КЯ (In,Ga)N/GaN оказывается крайне полезной техника двух- и трех-импульсного ФЭ, позволяющая получить богатый набор информации о характере дефазировки, энергетической релаксации, определению однородной ширины, скрытой за существенным неоднородным уширением. На сегодняшний день опубликовано лишь несколько работ, в которых ЧВС было использовано для исследования когерентных свойств экситонов в объемном GaN [173, 174], эпитаксиальных слоях [175, 176] и КЯ на основе GaN [117, 177]. Эти исследования проявляют довольное короткое экситонное время  $T_2$  в субпикосекундном диапазоне. Однако, во всех упомянутых работах использовалась фемтосекундная техника, для которой свойственно существенное влияние многочастичных процессов на скорость фазовой релаксации. Исследованию когерентной динамики с применением пикосекундной техники посвящена настоящая глава диссертации, основные результаты которой изложены в работе соискателя [163].

### 4.2 Исследуемый образец

Методика осаждения металлоорганических соединений из газовой фазы была использована для выращивания исследуемой структуры. В качестве заготовки использовалась сапфировая подложка с выращенным слоем GaN толщиной около 2 мкм. Последующий буферный слой GaN толщиной 700 нм был выращен при температуре 1030 °C и давлении 2 · 10<sup>4</sup> Па. Далее был выращен массив из 100 периодов KЯ (In,Ga)N/GaN толщиной 2.5 нм. Образец обладает градиентом состава и толщины слоев структуры, так как вращение подложки не производилось во время роста.

Рентгеноструктурный анализ структуры [178] дал оценки для средней концентрации индия в яме около 7.5 % и толщины барьеров 69.5 нм. Для такой

75

периодичной структуры может быть выполнено условие брэгговского отражения, которое проявляется в виде пика в спектре отражения [169]. При гелиевых температурах данный пик расположен в области энергии 3.393 эВ (365.4 нм) и имеет ширину около 32 мэВ (3.5 нм). В данной главе исследуются экситоны с более низкой энергией перехода, поэтому мы не ожидаем проявления существенных эффектов, связанных с пересечением экситонного и брэгговского резонансов.

# 4.3 Характеризация структуры

Для определения базовых оптических свойств экситонов в МКЯ была применена спектроскопия время-разрешенной ФЛ с помощью стрик-камеры в геометрии на пропускание при T = 1.5 К. Оптическое возбуждение производилось пикосекундным лазерным импульсом с энергией 3.44 эВ (360 нм). Данные, измеренные с временным разрешением около 20 пс, представлены на рисунке 29(а).

Измерения проявляют свечение из широкой спектральной области с распределением времени затухания, существенно меняющегося внутри области свечения. Интегрированный по времени спектр ФЛ, который показан на рисунке 29(б) содержит две линии Гауссовой формы, испытывающие большое неоднородное уширение. Основной пик, расположенный на энергии 3.154 эВ, обладает полной шириной на половинной высоте (FWHM) 46 мэВ соответствует эмиссии экситонов, а дополнительный пик с FWHM 62 мэВ есть фононное повторение, отстроенное на величину энергии оптического фонона 89.5 мэВ [179]. Была проведена аппроксимация кинетик ФЛ с помощью экспоненциального затухания для набора энергий. Полученная таким образом спектральная зависимость экситонного времени жизни  $\tau_0$  показана на рисунке 29(б). Данные показывают практически монотонное увеличение  $\tau_0$  с 0.8 до 4.5 нс при уменьшении энергии экситонного перехода.

# 4.4 Фотонное эхо со спектральным разрешением

Когерентная динамика экситонов в КЯ (In,Ga)N/GaN была исследована с помощью методики двух- и трехимпульсного ФЭ (см. рисунок 21). Экспериментальная установка ЧВС была применена в конфигурации, аналогичной



Рис. 29: (а) Спектр время-разрешенной ФЛ. (b) Зависимость извлеченного времени жизни экситона  $\tau_0$  (квадраты), наложенная на спектр ФЛ, интегрированный по времени (линия).

представленной в разделе 3.4. Возбуждение последовательностью из трех импульсов с  $\tau_{12} = 6.7$  пс и  $\tau_{23} = 20$  пс с энергией фотона  $\hbar\omega = 3.20$  эВ приводит к возникновению переходного сигнала ЧВС, временной профиль которого показан на рисунке 30(а). Он состоит из двух пиков гауссовой формы: первый расположен на  $2\tau_{12} = 13.3$  пс и соответствует первичному ФЭ (PE), а второй возникает в момент времени  $2\tau_{12} + \tau_{23} = 33.3$  пс и соответствует СФЭ (SPE). FWHM пика ФЭ равна 4.3 пс, ширина которого определяется сверткой истинного профиля ФЭ с опорным импульсом длительностью около 2.0-2.4 пс (1.5-1.8 мэВ). Увеличение амплитуды первого импульса  $P_1$ , определенной как корень из энергии импульса, до максимально доступной, соответствующей плотности энергии 200 нДж/см<sup>2</sup>, не приводит к отклонению от линейного роста амплитуды ФЭ, как показано на рисунке 30(б). При этом интенсивности второго и третьего импульсов были как минимум в два раза меньше во время измерений. Поэтому мы можем считать, что измерения соответствуют режиму  $\chi^{(3)}$ .



Рис. 30: (а) Временной профиль ЧВС (черный), состоящий из пиков РЕ и SPE. Красными пиками отмечены моменты прихода возбуждающих импульсов с указанием временных задержек. (б) Зависимость амплитуды пика РЕ от амплитуды первого импульса  $P_1$  с наложением линейной аппроксимации.

Применение узко-спектральной пикосекундной техники позволило селективно возбуждать экситоны с различной величиной энергии локализации и провести измерения ФЭ со спектральным разрешением. На рисунке 31 показана зависимость амплитуды первичного ФЭ от неоднородно уширенного ансамбля экситонов в KЯ (In,Ga)N/GaN при T = 1.5 K как функция сканируемой центральной энергии лазерного возбуждения с наложенным спектром  $\Phi \Pi$ из рисунка 29(b). В ходе измерений временная задержка была зафиксирована и составляла  $\tau_{12} = 13.3$  пс. График демонстрирует наблюдение сигнала первичного ФЭ в необычайно широком спектральном диапазоне энергии фотона E = 3.16 - 3.24 эВ (382–392 нм). Спектр имеет периодическую модуляцию, которую мы связываем с интерференцией по типу резонатора Фабри-перо между светом, отраженным от поверхности образца и от интерфейса GaN/сапфировая подложка [178]. С учетом этой модуляции спектр первичного ФЭ может быть аппроксимирован Гауссовым контуром с FWHM 43 мэВ (≈ 5 нм). Настолько большое неоднородное уширение по сравнению со спектральной шириной лазерного импульса  $\approx 1.7$  мэВ а также короткий временной профиль ФЭ подтверждают, что отклик ФЭ формируется подансамблем внутри спектральной области лазерного импульса. Заметим, что линия ФЛ, расположенная в низкоэнергетической части спектра, имеет лишь небольшое пересечение со спектром



Рис. 31: Спектры интенсивности ФЛ (синий) и амплитуды первичного ФЭ (красный) в области экситонного перехода.

ФЭ, и Стоксов сдвиг, определенный как разница между максимумами пиков ФЛ и ФЭ, составляет около 46 мэВ. При этом ранее проведенное сравнение спектров поглощения и ФЛ для аналогичных образцов при комнатной температуре дало значение сдвига порядка 20 мэВ [178].



Рис. 32: (а) Карта амплитуды первичного  $\Phi \Theta$ , измеренная как функция задержки  $\tau_{12}$  и энергии фотона с шагом 4 мэВ. (b) Набор кинетик затухания амплитуды первичного  $\Phi \Theta$  (точки) для нескольких значений энергии с аппроксимацией экспоненциально затухающими кривыми (пунктир).

Измерение амплитуды первичного  $\Phi \Im$  при фиксированной энергии фотона и сканируемой задержке  $\tau_{12}$  позволяет получить кинетику затухания сигнала. На рисунке 32(а) представлена карта спектральной зависимости кинетики первичного  $\Phi \Im$  в области экситонного перехода, а набор кинетик для нескольких значений энергий фотона показан на рисунке 32(b). Измерения показывают практически моноэкспоненциальный спад сигнала в представленном спектральном диапазоне, ожидаемый для используемой нами модели. Аппроксимация кинетик с помощью экспоненциального затухания

 $\propto \exp(-2\tau_{12}/T_2)$  дает значение времени дефазировки  $T_2$  и соответствующую ей скорость дефазировки  $\Gamma_2 = \hbar/T_2$ . Спектральная зависимость этих величин приведена на рисунке 33. График демонстрирует монотонное изменение времени  $T_2$  от 45 до 255 пс внутри широкой области экситонного перехода, что соответствует росту скорости  $\Gamma_2$  от 2.6 до 15 мкэВ по мере увеличения энергии фотона.



Рис. 33: (а) Спектральная зависимость времени  $T_1$  (зеленый),  $T_2$  (синий) и скорости  $\Gamma_2$  (красный) внутри области спектра амплитуды первичного  $\Phi \Theta$  (серый) из рисунка 31.

Аналогичным образом были проведены спектральные измерения кинетики затухания трехимпульсного СФЭ. В ходе измерений для каждой величины энергии фотона сканировалась задержка  $\tau_{23}$  при фиксированной задержке  $\tau_{12}$ и детектировалась амплитуда пика СФЭ, испытывающая экспоненциальное затухание  $\propto \exp(-\tau_{23}/T_1)$  со временем релаксации населенности  $T_1$ . Экспериментальные кривые для набора значений энергии фотона приведены на рисунке 34. Данные демонстрируют нетривиальную динамику населенности на начальном временном промежутке. Аппроксимация участка кривых с  $\tau_{23} > 50$  пс дает спектральную зависимость  $T_1$ , показанную на рисунке 33. Зависимость также показывает монотонное увеличение времени  $T_1$  от 0.4 до 1 нс при уменьшении энергии фотона внутри экситонного контура. Полученные значения  $T_1$ многократно больше соответствующих значений  $T_2$  и находятся ближе к значениям времени жизни экситонов  $\tau_0$ , полученных из эксперимента по времяразрешенной ФЛ и имеющих диапазон 0.9 - 2 нс. Для участка  $\tau_{23} < 50$  пс ввиду нехватки динамического диапазона изменения амплитуды СФЭ можно лишь дать примерную оценку времени релаксации  $T_1$  в диапазоне 50-100 пс, что намного ближе к полученным значениям времени дефазировки  $T_2$ .



Рис. 34: Кинетики затухания амплитуды СФЭ (точки) для нескольких значений энергии фотона с аппроксимацией экспоненциально затухающими кривыми (пунктир).

## 4.5 Температурные измерения фотонного эха

Влияние фононов на когерентную динамику экситонов может быть проанализировано с помощью проведения измерений кинетик затухания сигнала ЧВС при различной температуре [101, 105, 156—159]. В предыдущей главе была продемонстрирована эффективность такого метода для исследования процессов дефазировки экситонов и трионов в МКЯ ZnO/(Zn,Mg)O, поэтому мы применили такой же подход и для исследования структуры с МКЯ (In,Ga)N/GaN. Кинетики затухания ФЭ и СФЭ от экситонного ансамбля, измеренные при энергии фотона  $\hbar\omega = 3.183$  эВ и различной температуре образца, показаны на рисунке 35(а) и (b) соответственно. Кинетика первичного ФЭ затухает значительно быстрее с ростом температуры, в то время как кинетика затухания СФЭ в основном проявляет лишь уменьшение амплитуды СФЭ при фиксированной задержке  $\tau_{23}$ , а скорость затухания меняется незначительно в доступном для измерений диапазоне температур. Аппроксимация кинетик экспоненциальным затуханием дает нам зависимость величин  $T_1$ ,  $T_2$  и соответствующих им  $\Gamma_1$ ,  $\Gamma_2$ 



Рис. 35: Кинетики затухания первичного ФЭ (a) и СФЭ (b), измеренные при различной температуре.

от температуры, которые показаны на рисунке 36(a) и (b).

Температурная зависимость скорости дефазировки может быть аппроксимирована зависимостью  $\Gamma_2 = \Gamma_2^0 + \gamma T + b_1/(e^{E_1/k_BT} - 1)$ , график которой приведен на рисунке 36(b). Линейное нарастание при T < 10 K с коэффициентом  $\gamma = 0.7$  мкэВ/К соответствует дефазировке из-за рассеяния экситонов на акустических фононах. Коэффициент  $\gamma$  близок по величине к полученному нами коэффициенту для трионов в МКЯ ZnO/(Zn,Mg)O и к опубликованным ранее значениям для экситонов, локализованных на доноре в эпитаксиальном слое ZnO [101] (~2 мкэB/K).

Нелинейный рост скорости дефазировки при T > 10 К не может быть связан с рассеянием на продольных оптических фононах, энергия которых около 90 мэВ в подобных структурах. Аппроксимация зависимостью активационного типа дает значение  $E_1 = 5.7$  мэВ, что может характеризовать типичную энергию локализации. Похожее поведение скорости дефазировки наблюдалось ранее для локализованных экситонов в КТ [180]. Таким образом, мы видим, что акустические фононы могут существенно влиять на когерентную динамику экситонов в КЯ (In,Ga)N/GaN.



Рис. 36: Зависимость времен  $T_1$ ,  $T_2$  (a) и соответствующих им скоростей  $\Gamma_1$ ,  $\Gamma_2$  (b) от температуры.

#### 4.6 Анализ результатов

Спектральные зависимости времени энергетической  $T_1$  и фазовой релаксации  $T_2$  экситонного ансамбля могут быть связаны с влиянием локализации экситонов на флуктуациях КЯ. Наблюдаемый монотонный рост  $T_1$  и  $T_2$  при уменьшении энергии экситонного перехода качественно повторяет спектральное поведение времен релаксации трионного ансамбля  $T_A$  в MKЯ ZnO/(Zn,Mg)O, рассмотренное в предыдущей главе. Однако гетероструктуры (In,Ga)N/GaN имеют существенные отличия в виду наличия значительной неоднородности состава, характер которой существенно зависит от технологии выращивания. Во время роста исследуемого образца особое внимание было уделено уменьшению неоднородного уширения [169]. Тем не менее, значительный Стоксов сдвиг порядка 20 мэВ при T = 300 К и 40 мэВ при T = 1.5 К говорит о наличии выраженной пространственной локализации экситонов в КЯ и большом неоднородном уширении.

Исследование особенностей флуктуаций потенциала и причин их возник-

новения в КЯ (In,Ga)N/GaN проводилось различными методами, такими как просвечивающая электронная микроскопия [168], оптическая микроскопия ближнего поля [181] и сканирующая туннельная спектроскопия [182]. В последней работе было показано, что спектры микрофотолюминесценции проявляют наличие значительных флуктуаций потенциала на характерных размерах около 3 нм, которые в некотором смысле можно рассматривать как флуктуационные квантовые точки. Экситон в GaN также имеет боровский радиус также около 3 нм [183], поэтому можно допустить влияние локализации и пьезоэлектрических эффектов на изменение скорости радиационной релаксации, определяющей  $T_1$ .

Другой возможной причиной увеличения скорости релаксации экситонов при увеличении энергии перехода является усиление свето-экситонного взаимодействия в виду особой пространственной периодичности структуры. При выполнении условия Брегговской дифракции от слоев КЯ на частоте экситонного перехода в КЯ возникает сверхизлучающая экситон-поляритонная мода как результат электромагнитной связи N КЯ, и скорость радиационного затухания возрастает в N раз [184]. Такие эффекты наблюдались в экспериментах по ЧВС в Брегговских структурах на основе арсендиа галлия [185]. Однако, как было сказано ранее, сигнал ФЭ был измерен в более длинноволновой области, чем расположение Брэгговского пика при гелиевых температурах (3.392 эВ), поэтому мы не ожидаем влияния такого рода эффектов в нашем случае. Более того наблюдаемое огромное неоднородное уширение около 43 мэВ по сравнению с полученной нами однородной шириной порядка 20 мкэВ делает маловероятным создание сверхизлучающего режима при низких температурах.

Температурные измерения показали относительно слабое влияние акустических фононов на дефазировку экситонов с линейным коэффициентом 0.7 мкэВ/К. Данный факт также указывает на сильную локализацию экситонов в области флуктуаций, похожих на флуктуационные КТ. Для сравнения линейный коэффициент для экситон-фононного рассеяния в КТ InGaAs/GaAs либо составлял  $\gamma = 0.5 \ \mu eV/K$  [186], либо с точностью до погрешности измерений отсутствовал [180].

Представленные исследования когерентной динамики экситонов в КЯ (In,Ga)N/GaN QWs в пикосекундном диапазоне являются первой работой такого плана, поэтому сложно проводить прямое сравнение полученных результа-

тов с опубликованными работами. Большинство работ, посвященных изучению сильно локализованных экситонов, используют метод микрофотолюминесценции для исследования свойств индивидуальных состояний при низких температурах. Спектры ФЛ, полученные при исследовании одиночной яме

In<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N/GaN толщиной 3 нм при T = 4 K, имели пики индивидуальных экситонных состояний с шириной линий до 800 мкэВ [187]. Применение мезаструктур размером 0.2 мкм для МКЯ In<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>N/GaN позволило проявить в спектрах ФЛ линии отдельных сильно локализованных экситонов с шириной 400 мкэВ при T = 4 K [188]. Авторы работы также приходят к выводу, что локализация экситонов на минимумах потенциала, образованных пространственными скоплениями индия, похожа на локализацию в КТ. Для сравнения мы можем оценить величину однородной ширины  $2\hbar\Gamma_2$  при T = 4 K. C учетом вклада экситон-фононного взаимодействия порядка  $2\gamma T \approx 6$  мкэВ ширина  $2\hbar\Gamma_2$ находится в диапазоне 11–35 мкэВ в зависимости от энергии перехода. Полученная оценка на порядок меньше опубликованных ранее значений, полученных из спектроскопии микрофотолюминесценции. В качестве возможной причины расхождения данных можно предложить влияние уширение спектральных линий ФЛ из-за спектрального блуждания (спектральный джиттер), вызванного флуктуацией статического потенциала во время регистрации сигнала.

#### 4.7 Выводы

Нами был обнаружен сигнал фотонного эха в ультрафиолетовом диапазоне от локализованных экситонов в периодической структуре с КЯ (In,Ga)N/GaN. Применив технику двухимпульсного пикосекундного ФЭ, нам удалось измерить однородную ширину перехода локализованных экситонов со спектральным разрешением при гелиевой температуре. Полученные экспериментальные данные проявили когерентную динамику экситонов в нашей структуре на существенно более долгих временах по сравнению с предыдущими исследованиями аналогичных структур с более высоким содержанием индия методом микрофотолюминесценции. Время экситонной дефазировки достигает 255 пс, что значительно дольше типичных значений времени дефазировки локализованных экситонов в квантовых ямах A<sup>III</sup>-B<sup>V</sup> GaAs/(Al,Ga)As [157], (In,Ga)As/GaAs [189] и структурах A<sup>II</sup>-B<sup>VI</sup> CdTe/(Cd,Mg)Te [115] и ZnO/(Zn,Mg)O [154], в которых характерные времена когерентности находятся в диапазоне десятков пикосекунд. Спектральные измерения демонстрируют монотонный пятикратный рост времени дефазировки по мере увеличения локализации экситонов.

# Глава 5. Спин-зависимое фотонное эхо от экситонов в квантовой яме (In,Ga)As/GaAs в поперечном магнитном поле

В главе представлено экспериментальное исследование поведения сигнала спин-зависимого ФЭ от ансамбля экситонов в тонкой KЯ (In,Ga)As/GaAs при приложении поперечного магнитного поля вдоль плоскости образца. Глава содержит краткое введение, описание образца, экспериментальные данные по линейной и нелинейной спектроскопии в области экситонного перехода, анализ модели, описывающей прецессию оптической когерентности между светлыми и темными экситонными состояниями, и сравнение экспериментальных результатов с теоретическими предсказаниями. Основные результаты главы отражены в публикациях соискателя [144, 190, 191].

## 5.1 Введение к главе

Сохранение когерентности является ключевым свойством системы, рассматриваемой в качестве платформы для полностью оптической обработки информации классическим и квантовым способом. В этом контексте увеличение времени фазовой релаксации системы является актуальной задачей. В разделе 1.3.2 был продемонстрирован потенциал техники спин-зависимого ФЭ в качестве мощного нелинейного инструмента исследования когерентной динамики экситонных комплексов в наноструктурах. Одновременное использование действия световых импульсов на структуру и приложение внешнего магнитного поля позволяет комбинировать преимущества этих двух процессов и достичь сверхбыстрого оптического управления состоянием системы и долгоживущего хранения информации в спиновой подсистеме [127, 128].

Протоколы когерентного контроля на основе спин-зависимого ФЭ предполагают в качестве обязательного начального шага перенос информации об оптической фазе между состояниями с разной проекцией спина с помощью приложения поперечного магнитного поля. Реализация данного шага накладывает условие на систему  $T_2 > 2\pi/\Omega$ , где  $T_2$  - время оптической фазовой релаксации (дефазировки), а  $\Omega$  - круговая частота Ларморовой прецессии. В случае относительно небольших магнитных полей  $B \approx 1$  Т подходящими системами являются ансамбль трионов [127, 128] или связанных на доноре экситонов [129], имеющих долгое время  $T_2$  и сравнительно большую величину g-фактора. Однако, использование нейтральных экситонов в подобных протоколах не было успешно реализовано до сих пор. В качестве ограничивающих факторов можно привести быструю дефазировку экситонов, как было показано в разделе 2.4.

В данной главе будут приведены оригинальные исследования, посвященные применению нейтральных экситонов в качестве платформы для когерентного оптического контроля со спиновой степенью свободы. Для этого в качестве образца мы выбрали модельную систему, представляющую собой высококачественный образец с одиночной КЯ (In,Ga)As/GaAs. Предварительные исследования подобных структур продемонстрировали крайне низкое безызлучательное уширение спектральных линий экситонного ансамбля, величина которого соизмерима с радиационной шириной, определяемой скоростью излучательной рекомбинации [80]. Такие структуры проявляют эффективный перенос оптической когерентности в экситонную систему, что позволяет наблюдать сравнительно долгое время  $T_2$ . Оно дало нам принципиальную возможность наблюдать несколько периодов осцилляций спинов электрона и дырки в экситоне в сигнале спин-зависимого  $\Phi$ Э.

Принципиальная разница между заряженными и нейтральными экситонами состоит в энергетических структурах, которые были рассмотрены в разделе 2.2. Помимо экситонов, активно взаимодействующих со светом (светлых), существуют темные экситоны, не взаимодействующие со светом напрямую. В случае КЯ на основе арсенида галлия такие состояния - это экситоны с проекцией полного углового момента на ось роста роста структуры  $S_z = \pm 2$ , для которых оптические переходы запрещены. Такие темные экситоны не имеют прямого канала излучательной рекомбинации, поэтому их время  $T_1$  должно быть дольше времени  $T_1$  светлых экситонов. Если основной механизм фазовой релаксации связан с энергетической релаксацией, то для времен фазовой релаксации  $T_2$  также ожидается аналогичное соотношение.

Информация о темных экситонных состояниях может быть получена различными способами. Некогерентное свечение темных экситонов было обнаружено в двумерных структурах дихалькогенидов переходных металлов при приложении поперечного магнитного поля в десятки Тесла [192, 193], а также при использовании связи с состояниями поверхностных плазмон-поляритонов [194]. Излучение темных экситонов было также продемонстрировано в КЯ [195], КТ [196] и углеродных нанотрубках [197]. Для когерентного управления спиновым состоянием темных экситонов использовались биэкситонные состояния без использования внешнего магнитного поля в одиночных КТ [198, 199]. Методика ЧВС позволила проявить спин-флип переходы между светлыми и темными экситонами в КЯ GaAs/AlGaAs [200] и коллоидных КТ CdSe/CdS [201]. Также стоит упомянуть работы по исследованию влияния магнитного поля на когерентную динамику экситонов в фемтосекундном временном диапазоне [202, 203]. Эксперимент по наблюдению осцилляций в сигнале двухимпульсного ФЭ в результате смешивания светлых и темных экситонов был смоделирован теоретически [136], но экспериментально не был продемонстрирован до настоящего времени. В данной главе мы рассмотрим экспериментальную реализацию такого протокола спин-зависимого пикосекундного двухимпульсного ФЭ от экситонов, включающего в себя долгоживущие темные экситоны.

# 5.2 Исследуемый образец

Высококачественный образец был выращен методом молекулярно пучковой эпитаксии на подложке GaAs вдоль направления (100). Образец был выращен в ресурсном центре Нанофотоника СПбГУ. В процессе роста производилось вращение подложки для увеличения однородности структуры. На подложке последовательно были выращены буферный слой GaAs толщиной 1000 нм, одиночная KЯ InGaAs толщиной 3 нм и концентрацией индия около 3–4 %. После слоя KЯ был выращен верхний слой GaAs толщиной 170 нм.

# 5.3 Линейная спектроскопия образца

Базовые оптические свойства структуры были определены с помощью линейных методик спектроскопии отражения и ФЛ. Спектроскопия отражения была проведена при низкой плотности оптического возбуждения с целью минимизации нелинейных проявлений. Оптическое возбуждение проводилось под углом Брюстера линейно поляризованным светом, вектор напряженности которого лежит в плоскости падения (*p*-поляризация). Лазерный луч фокусировался в пятно размерами 150 × 50 мкм. Резонансное отражение света от КЯ в такой геометрии было рассмотрено в разделе 1.2.3, и спектр отражения в области экситонного резонанса может быть аппроксимирован Лоренцевским контуром [189, 204], согласно выражению 7. Аппроксимация позволяет определить величины радиационной ширины  $\hbar\Gamma_0$  и нерадиационного уширения  $\hbar\Gamma_{NR}$ .



Рис. 37: (а) Спектр отражения, измеренный под углом Брюстера (сплошной), подгонка Лоренцевским контуром (штрихпунктир), спектр лазерного импульса, используемого в эксперименте ФЭ (пунктир). (b) Спектры ФЛ с круговой поляризацией (сплошные) и степень круговой поляризации ФЛ (треугольники).

Спектр отражения от образца с КЯ (InGa)As/GaAs, измеренный при T = 10 К, представлен на рисунке 37(a). Спектр представляет собой изолированный резонанс, отвечающий переходу экситона с тяжелой дыркой в КЯ (X). Пик центрирован на величине энергии фотона  $E_X = 1.510$  эВ и имеет амплитуду 0.1 и полуширину на полувысоте (HWHM) 105 мкэВ. Аппроксимируя пик Лоренцевым контуром, который показан штрихпунктирной линией, мы получаем значения для радиационной ширины  $\hbar\Gamma_0^X = 35\pm 3$  мкэВ и нерадиационного уширения  $\hbar\Gamma_{NR}^X = 70 \pm 3$  мкэВ. Соотношение  $\hbar\Gamma_{NR}^X \approx 2\hbar\Gamma_0^X$  позволяет оценить эффективность перевода оптической когерентности между светом и экситонами и указывает на высокое качество образца.

Спектры ФЛ, измеренные при T = 4 К, приведены на рисунке 37(b). Для возбуждения использовалось лазерное излучение с круговой поляризацией ( $\sigma$ +), настроенное на экситонный резонанс в объемном GaAs

 $(\hbar\omega = 1.515 \text{ эВ})$ . Луч был сфокусирован на поверхности образца в пятно диаметром около 50 мкм. Сигнал  $\Phi \Pi$  детектировался в совпадающей  $\sigma +$  (красная кривая) и в ортогональной  $\sigma$ - (синяя кривая) круговой поляризации. По данным измерениям была посчитана степень круговой поляризации сигнала  $\Phi \Pi$  следующим образом:  $DCP = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-}$ , где  $I^{\pm}$  - интенсивность  $\Phi \Pi$  с совпадающей (ортогональной) круговой поляризацией по отношению к поляризации возбуждения. Основной пик, соответствующий экситону X, практически не имеет Стоксового сдвига относительно линии в спектре отражения. Со стороны низких энергий наблюдается дополнительный пик, который мы связываем с излучением биэкситонов с тяжелой дыркой (XX). Одним из аргументов в пользу такой идентификации является более низкая степень DCP в области XX по сравнению с экситонным излучением X, частично сохраняющим исходную поляризацию возбуждающего света, как показано на рисунке 37(b). Такое поведение типично для экситон-биэкситонной системы [205]. Расщепление между пиками  $E_{b(XX)} = 1.1 \pm 0.2$  мэВ близко к опубликованным значениям энергии связи биэкситона в КЯ GaAs/AlGaAs и InGaAs/GaAs [205-207].

Данные измерения показывают, насколько важно применение именно пикосекундной лазерной техники для исследования когерентной оптической динамики экситонов в нашем случае. Фемтосекундное возбуждение импульсами со спектральной шириной порядка 20 мэВ ранее активно использовалось для исследования схожих структур методами ЧВС и ФЭ [104, 207—209]. Такое широкоспектральное возбуждение приводит к одновременному возбуждению различных ансамблей квазичастиц, включая экситоны, трионы и биэкситоны. В результате сигнал ЧВС проявляет нетривиальное осциллирующее временное поведение даже в отсутствии внешнего магнитного поля. Использование узкоспектральных пикосекундных лазерных импульсов в данной работе позволяет нам изолированно возбуждать только экситонный ансамбль, избегая многочастичных взаимодействий. Дальнейшие измерения ФЭ были проведены при настройке лазера на экситонный резонанс X, поэтому мы можем опустить учет биэкситонных состояний при последующем анализе данных.



Рис. 38: Схема возбуждения и детектирования ФЭ от образца с КЯ InGaAs/GaAs при приложении внешнего магнитного поля вдоль плоскости образца в геометрии Фохта.

# 5.4 Фотонное эхо от экситонов в квантовой яме (In,Ga)As/GaAs

Для исследования когерентной динамики экситонов в поперечном магнитном поле мы применили технику спин-зависимого двухимпульсного первичного ФЭ. Для проведения данных исследований, была собрана экспериментальная установка в СПбГУ на базе РЦ Нанофотоника, схема которой и принцип работы описаны в разделе 2.4. Схема текущей реализации установки показана на рисунке 38. Ключевой особенностью по сравнению с предыдущими экспериментами является использование внешнего поперечного магнитного поля  $\vec{B}$ , вектор которого лежит в плоскости образца и параллелен горизонтальному направлению лабораторной системы отсчета (H), при этом свет направлен практически по нормали к плоскости образца. Данная конфигурация соответствует геометрии Фохта. Измерения проводились с использованием линейных поляризаций возбуждения и детектирования. Поляризационная конфигурация эксперимента обозначается далее как  $XY \rightarrow Z$ , где X и Y - поляризации первого и второго возбуждающих импульсов, а Z - детектируемая поляризация сигнала. Главные поляризации эксперимента: горизонтальная (H), параллельная вектору  $\vec{B}$ , и вертикальная (V), ортогональная вектору  $\vec{B}$ .



Рис. 39: (a) Временной профиль амплитуды первичного ФЭ от экситонов в КЯ, измеренный для нескольких значений  $\tau_{12}$ .

#### 5.4.1 Нулевое магнитное поле

Сигнал ЧВС от ансамбля экситонов в КЯ (In,Ga)As/GaAs, измеренный с пикосекундным временным разрешением в геометрии НН-Н при нулевом магнитном поле для нескольких значений задержки  $\tau_{12}$ , показан на рисунке 39. Сигнал ожидаемо представляет собой пик первичного ФЭ, который достигает максимума в момент времени  $\tau_{Ref} = 2\tau_{12}$ . В отличие от структур ZnO/(Zn,Mg)O и (In,Ga)N/GaN форма профиля  $\Phi \Theta$  от исследуемого ансамбля экситонов стремится к форме Гауссового пика с FWHM около 20 пс по мере увеличения  $\tau_{12}$ . Напомним, что представленный сигнал есть результат кросскорреляции между сигналом ЧВС и опорным импульсом с FWHM 3 пс. Однако, настолько длительный временной профиль кросс-корреляции позволяет нам считать в данном случае, что детектируемый сигнал отражает практически истинный временной профиль ФЭ и уширением, связанным со сверткой сигнала с опорным импульсом, можно пренебречь. Такая большая длительность сигнала ФЭ соответствует сравнительно малому неоднородному уширению частотного распределения, которое составляет около 92 мкэВ. При увеличении задержки  $\tau_{12}$  максимум  $\Phi \Im$  затухает моноэкспоненциально со временем дефазировки  $T_2 = 30$  пс. Далее нас будет интересовать только величина максимума пика амплитуды  $\Phi \Theta$ , то есть величина сигнала кросс-корреляции при  $\tau_{Ref} = 2\tau_{12}$ .

Для подтверждения экситонной природы интересующего нас ансамбля мы применили недавно развитый метод поляриметрии ФЭ [135, 136]. Так как



Рис. 40: Зависимости амплитуды ФЭ при  $\tau_{12} = 15$  пс от угла поворота между плоскостями линейных поляризаций первого и второго возбуждающих импульсов  $\varphi$ , при условии, что первый импульс поляризован вдоль направления H, а детектирование проводилось вдоль направления H (синий) и ортогонального V (красный). Сплошные линии соответствуют экспериментальным данным, а пунктирные теоретически предсказанному поведению [135].

экситоны и трионы (а также экситоны, локализованные на нейтральной примеси) имеют отличающиеся поляриметрические зависимости ФЭ от поляризационной конфигурации возбуждения, мы можем использовать данное свойство для определения типа квази-частиц, формирующих сигнал ФЭ. Разбор данных зависимостей приведен в разделе 2.2. В частности, при возбуждении экситонного ансамбля линейно поляризованными импульсами, повернутыми друг относительно друга на угол  $\varphi$ , сигнал ФЭ так же будет линейно поляризован, плоскость поляризации будет совпадать с плоскостью поляризации второго импульса, а амплитуда сигнала будет зависеть гармоническим образом от  $\varphi \propto \cos(\varphi)$ [135].

Поляриметрические измерения сигнала ФЭ приведены на рисунке 40. Они представляют собой зависимость амплитуды ФЭ от угла  $\varphi$  при детектировании линейной поляризации сигнала вдоль направления Н (синяя кривая) и V (красная кривая), при условии, что первый возбуждающий импульс всегда был линейно поляризован вдоль направления Н. Кривая  $H\varphi \rightarrow H$  имеет два максимума одинаковой амплитуды, а кривая  $H\varphi \rightarrow V$  имеет четыре симметричных максимума, амплитуда которых почти в два раза меньше чем величина максимумов кривой  $H\varphi \rightarrow H$ . Именно такое поведение теоретически ожидается для экситонной модели (приведено на рисунке 40 пунктирной линией), и было продемонстрировано на экситонном ансамбле в КЯ CdTe/(Cd,Mg)Te [135]. Качественное согласие между экспериментальными данными и теоретическим моделированием подтверждает тот факт, что исследуемый резонанс отвечает ансамблю нейтральных экситонов.

#### 5.4.2 Фотонное эхо при приложении поперечного магнитного поля



Рис. 41: Кинетики затухания амплитуды ФЭ от экситонов, измеренные в поперечном магнитном поле (геометрия Фохта). Кривые сдвинуты параллельно по вертикали для удобства.

Ключевой эксперимент в данной работе состоит в измерении кинетики затухания амплитуды ФЭ при сканировании задержки  $\tau_{12}$ . На рисунке 41 при-

веден набор таких кинетик, измеренных в геометрии HH $\rightarrow$ H (a) и VV $\rightarrow$ V (b) при приложении внешнего поперечного магнитного поля (геометрия Фохта) в диапазоне B = 0 - 6 T. В нулевом магнитном поле поведение идентично для обеих геометрий, характеризуемое моноэкспоненциальным затуханием со временем дефазировки светлых экситонов  $T_2^b = 30$  ps. Обратим внимание, что данные кривые не проявляют никаких признаков экситон-биэкситоных биений [209], так как пикосекундная техника позволяет нам точно настроить центральную длину волны лазера на экситонный резонанс. Данный факт позволяет нам опустить биэкситонные состояния при дальнейшем теоретическом рассмотрении.

Приложение поперечного магнитного поля в геометрии Фохта, вектор которого направлен вдоль направления H, приводит к радикальному изменению поведения сигнала. В кинетике затухания амплитуды ФЭ начинают проявляться осцилляции в обеих геометриях. В случае HH $\rightarrow$ H частота этих биений монотонно растет с ростом поля B, в то время как в геометрии VV $\rightarrow$ V кинетика слабо меняется в диапазоне полей  $B \ge 2$  T. При большой величине поля осцилляции испытывают затухание контраста с ростом задержки  $\tau_{12}$ . Обратим также внимание на нетривиальное поведение сигнала при B = 1 T в геометрии HH $\rightarrow$ H и диапазоне поля от 1 T до 6 T в геометрии VV $\rightarrow$ V. В этих случаях вместо гармонических осцилляций кинетика затухания ФЭ проявляет апериодическое поведение, при котором сигнал ФЭ достигает минимума только один раз и затем затухает с более долгим характерным временем по сравнению с исходным  $T_2^b$ . Все эти особенности указывают на необходимость построения теоретической модели, корректно описывающей зависимость сигнала ФЭ от задержки  $\tau_{12}$ , магнитного поля B и поляризационной конфигурации.

# 5.5 Модель экситонного ансамбля в квантовой яме в поперечном магнитном поле

Рассмотрим модель экситонов с тяжелой дыркой в КЯ, описание которой приведено в разделе 2.2. Она состоит из 5 состояний, характеризующихся проекцией полного углового момента (для краткости будем дальше называть его спином) на ось квантования  $S_z$ : основное состояние кристалла с  $S_z = 0$ , пара светлых экситонных состояний с  $S_z = \pm 1$  и пара темных экситонных состояний



Рис. 42: Схематическое изображение экситонных состояний и взаимодействия экситонов со светом в поперечном магнитном поле. Черными стрелками обозначены разрешенные оптические переходы под действием света с круговой поляризацией  $\sigma \pm$ , пунктирные эллипсы соответствуют Ларморовской прецессии спина электрона (синий) и тяжелой дырки (красный).

с  $S_z = \pm 2$ . Схема уровней приведена на рисунке 42. Данные экситоны образуются из электронов в зоне проводимости со спином  $s^e = 1/2$  ( $l^e = 0$ ,  $s^e = 1/2$ ) и тяжелых дырок в валентной зоне со спином  $j^{hh} = 3/2$  ( $l^{hh} = 1$ ,  $s^{hh} = 1/2$ ) [58, 139, 210, 211].

Покажем, что наблюдаемые осцилляции в кинетике затухания ФЭ вызваны действием магнитного поля на экситоны. Поперечное магнитное поле в геометрии Фохта вызывает Ларморову прецессию спинов электрона и дырки в экситоне, изображенную пунктирными овалами на рисунке 2.2. Прецессия проекции спина электрона  $s_z^e = \pm 1/2$  приводит к смешиванию светлых экситонных состояний  $S_z = +1$  ( $S_z = -1$ ) с темными состояниями  $S_z = +2$  ( $S_z = -2$ ), а прецессия спина тяжелой дырки  $j_z^{hh} = \pm 3/2$  смешивает состояния  $S_z = +1$  ( $S_z = -1$ ) с состояниями  $S_z = -2$  ( $S_z = +2$ ) [58, 143, 212]. Именно данное смешивание светлых и темных экситонов происходит во время формирования ФЭ [127, 128].

Эксперимент спин-зависимого ФЭ может быть рассмотрен аналитически с помощью решения уравнения Линдблада (23) для экситонной матрицы плотности  $\rho$  по аналогии со случаем, разобранным в разделе 2.1.4. Такой же подход был применен для анализа спин-зависимого ФЭ от трионов в КЯ CdTe/(Cd,Mg)Te [127, 130]. Уравнение имеет следующий вид:

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \rho] + \Gamma, \qquad (39)$$

где  $\hat{H}$  - гамильтониан экситонной системы, а  $\Gamma$  - феноменологически введенная матрица релаксации, содержащая только члены фазовой релаксации. В нашем

случае важно учитывать скорости дефазировки для светлых  $\gamma_b$  и темных  $\gamma_d$ экситонов независимо. Гамильтониан включает в себя три вклада, описывающие невозмущенную экситонную систему, взаимодействие со светом и действие поперечного магнитного поля. В нулевом поле обменное взаимодействие между электроном и дыркой в экситоне вызывает расщепление экситонных состояний, как показано в разделе 2.3. Расщепление между дублетами светлых и темных экситонов определяется константой изотропного обменного взаимодействия  $\delta_0$ . Анизотропное обменное взаимодействие приводит к дополнительному расщеплению данных дублетов [58, 143], однако мы не будем его учитывать для простоты вычислений, поскольку обычно анизотропное обменное взаимодействие существенно слабее изотропного. В базисе экситонных состояний  $S_z = \{0; +1; -1; +2; -2\}$  полный гамильтониан имеет следующий вид:

$$\hat{H} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & f_{+}^{*}e^{i\omega t} & f_{-}^{*}e^{i\omega t}; & 0 & 0\\ f_{+}e^{-i\omega t} & 2\omega_{0} + \delta_{0}/\hbar & 0 & \omega_{e} & \omega_{h} \\ f_{-}e^{-i\omega t} & 0 & 2\omega_{0} + \delta_{0}/\hbar & \omega_{h} & \omega_{e} \\ 0 & \omega_{e} & \omega_{h} & 2\omega_{0} - \delta_{0}/\hbar & 0\\ 0 & \omega_{h} & \omega_{e} & 0 & 2\omega_{0} - \delta_{0}/\hbar \end{pmatrix}.$$
(40)

Здесь  $\omega_0$  - частота экситонного резонанса,  $\omega$  - частота возбуждающего света,  $\omega_e$ и  $\omega_h$  - частоты Ларморовой прецессии электронного и дырочного спина, а  $f_{\pm}$  - коэффициент, пропорциональный огибающей компоненты электромагнитного поля возбуждающего импульса с круговой поляризацией  $E_{\sigma^{\pm}}$ :

$$f_{\pm}(t) = -\frac{2e^{i\omega t}}{\hbar} \int d(\boldsymbol{r}) E_{\sigma_{\pm}}(\boldsymbol{r}, t) d^3 r, \qquad (41)$$

где  $d(\mathbf{r})$  - матричный элемент дипольного момента перехода между основным состоянием и состоянием светлого экситона. При расчете также воспользуемся приближением вращающейся волны, и будем считать, что временной профиль лазерных импульсов имеет прямоугольную форму. Дальнейшее существенное упрощение состоит в разделении во времени взаимодействия с лазерными импульсами и эволюции системы в остальное время [127—129, 136]. Такая процедура оправдана, так как длительность импульса (3 пс) существенно короче, чем времена дефазировки и период Ларморовой прецессии при рассматривае-

мом диапазоне магнитного поля. Поэтому мы можем не учитывать релаксацию и прецессию в магнитном поле во время действия импульсов.

Анализ показывает, что макроскопическая поляризация определяется элементами матрицы плотности  $\rho_{12}$  и  $\rho_{13}$ , которая в результате интегрирования по ансамблю экситонов с неоднородно уширенной резонансной частотой  $\omega_0$  имеет максимум в форме эхо импульса при  $t = 2\tau_{12}$ . Итоговое выражение для амплитуды  $\Phi \Theta$ , P, при коллинеарном линейно поляризованном возбуждении и детектировании имеет вид:

$$P(\alpha) \propto e^{-2\gamma\tau_{12}} \underbrace{\left| R_H \cos^2 \alpha + R_V \sin^2 \alpha \right|^2}_R,\tag{42}$$

где  $\gamma = \frac{\gamma_b + \gamma_d}{2}$  - средняя скорость дефазировки,  $\alpha$  - угол наклона плоскости поляризации света относительно направления магнитного поля. Компоненты  $R_{H,V}$  определены следующим образом:

$$R_{H,V} = \cos(\Omega_{H,V}\tau_{12}) + \frac{i\frac{\delta_0}{2\hbar} - \Delta\gamma}{\Omega_{H,V}}\sin(\Omega_{H,V}\tau_{12}), \qquad (43)$$

где  $\Omega_{H,V}$  эффективная частота Ларморовской прецессии:

$$\Omega_{H,V} = \sqrt{\Omega_{H0,V0}^2 + \left(\frac{\delta_0}{2\hbar} + i\Delta\gamma\right)^2},\tag{44}$$

$$\Omega_{H0,V0} = \frac{\omega_e \pm \omega_h}{2}, \ \Delta \gamma = \frac{\gamma_b - \gamma_d}{2}.$$
(45)

Наиболее простой вид P имеет при  $\alpha = 0^{\circ}$ , соответствующий геометрии HH $\rightarrow$ H (см. рисунок 38), и при  $\alpha = 90^{\circ}$  (геометрия VV $\rightarrow$ V), поэтому основные измерения были проведены именно в данных поляризационных конфигурациях.

## 5.6 Анализ экспериментальных результатов

Выражение (42) позволяет описать все представленные кинетики затухания ФЭ во всем доступном диапазоне величины магнитного поля. Ниже мы подробнее рассмотрим наиболее значимые особенности модели в сравнении с экспериментальными данными, для чего наиболее показательные случаи показаны на рисунке 43. В нулевом поле выражение (42) сокращается до моноэкспоненциального затухания  $P \propto e^{-2\gamma_b \tau_{12}}$ , соответствующего классическому случаю ФЭ от ансамбля светлых экситонов, подгонка данных приведена на рисунке 43(а). При B > 0 на экспоненциальное затухание накладывается осциллирующий член R. Колебание когерентности между светлыми и темными экситонными состояниями с разными скоростями дефазировки  $\gamma_{b,d}$  приводит к значительным изменениям, а именно частота прецессии  $\Omega_{H,V}$  теперь зависит от разницы  $\Delta\gamma$ . Выражение для R можно представить в виде комбинации осциллирующей и не осциллирующей компонент, соотношение между которыми определяет временное поведение сигнала. Тем не менее, при выполнении условий  $\Delta\gamma \ll |\Omega_{H0,V0}|$ и  $\delta_0/\hbar \to 0$  поведение близко к произведению экспоненциального затухания и гармонической функции, осциллирующей на единственной частоте. Если скорости дефазировки одинаковы  $\gamma_b = \gamma_d$  выражение (42) совпадает с результатом ранее проведенного моделирования [136]:

$$P_{H,V} \propto e^{-2\gamma_b \tau_{12}} \left( \cos^2(\Omega_{H,V} \tau_{12}) + \frac{\delta_0^2}{4\hbar^2} \frac{\sin^2(\Omega_{H,V} \tau_{12})}{\Omega_{H,V}^2} \right).$$
(46)

Похожая ситуация с небольшой коррекцией времени затухания реализуется при больших полях  $B \ge 3$  Т в геометрии HH $\rightarrow$ H, как показано на рисунке 41. Наиболее характерный случай наблюдается при B = 6 Т, график которого вместе с аппроксимацией показан на рисунке 43(b). Реализация автоматизированной подгонки позволила провести одновременную аппроксимацию серии экспериментальных кривых, измеренных в геометриях HH $\rightarrow$ H, VV $\rightarrow$ V DD $\rightarrow$ D и DX $\rightarrow$ D, с использованием единых параметров подгонки. Индексы D и X соответствуют линейным поляризациям, повернутым относительно направления поля (и соответственно направления H) на угол  $\pi/4$  и  $3\pi/4$ . Геометрия DX $\rightarrow$ D соответствует кросс-линейному возбуждению и детектированию сигнала, и выражение для амплитуды  $\Phi$ Э для данной геометрии имеет вид:

$$P_{DX\to D} \propto e^{-2\gamma\tau_{12}} |\cos(\Omega_H \tau_{12}) - \cos(\Omega_V \tau_{12}) + i(\frac{\delta_0}{2\hbar} + i\Delta\gamma) \times \\ \times \left[\frac{\sin(\Omega_H \tau_{12})}{\Omega_H} - \frac{\sin(\Omega_V \tau_{12})}{\Omega_V}\right]|^2$$
(47)

На рисунке 44 показана одна из таких серий, измеренная при B = 6 Т. Графики



Рис. 43: Кинетики затухания амплитуды ФЭ от экситонов (точки) и теоретическая аппроксимация моделью 42 (сплошная линия) при B = 0; 1 T (a) и B = 6 T (b).

демонстрируют качественное и количественное согласие между теоретической зависимостью и результатом измерений в динамическом диапазоне значений сигнала около трех порядков величины.

Кинетики затухания ФЭ, полученные при B = 1 - 3 Т в HH $\rightarrow$ H геометрии и при B > 1 Т в VV $\rightarrow$ V геометрии, демонстрируют неочевидное поведение, характеризующееся апериодической осцилляцией сигнала. Тем не менее, представленная модель корректно описывает данные измерения, как продемонстрировано на рисунке 43(b). Для составления более наглядного представления о протекающих процессах нами был детально рассмотрен упрощенный случай с пренебрежимо малой величиной обменного взаимодействия [190]. Далее приведем результат анализа для интересующего нас апериодического поведения сигнала.



Рис. 44: Кинетики затухания  $\Phi \Theta$  (синие точки) от экситонов при B = 6 T, измеренные в нескольких поляризационных геометриях. Красной линией показана подгонка с использованием единых параметров для всех четырех измерений.

# 5.7 Апериодический режим осцилляций

Рассмотрим подробнее апериодическое поведение системы, несколько упростив исходную задачу. Во-первых примем  $\delta_0 = 0$ . Во-вторых, покажем, что при использовании линейно поляризованного возбуждения задачу о динамике пятиуровневой системы можно свести к задаче о трехуровневой системы. Для этого необходимо перейти от базиса экситонных состояний  $\{0; +1; -1; +2; -2\}$ к базису линейных состояний  $\{0; H1; V1; H2; V2\}$ :

$$|H1\rangle = \frac{|+1\rangle + |-1\rangle}{\sqrt{2}}, \quad |H2\rangle = \frac{|+2\rangle + |-2\rangle}{\sqrt{2}},$$

$$|V1\rangle = \frac{|+1\rangle - |-1\rangle}{\sqrt{2}}, \quad |V2\rangle = \frac{|+2\rangle - |-2\rangle}{\sqrt{2}}.$$
(48)

В таком базисе гамильтониан системы имеет вид:

102



Рис. 45: Схема экситонных уровней в базисе  $\{0; +1; -1; +2; -2\}$  (а) и базисе линейных состояний  $\{0; H1; V1; H2; V2\}$  (b). Зелеными стрелками обозначена Ларморовская прецессия спинов электрона и дырки в экситоне, а вертикальными стрелками обозначены разрешенные оптические переходы. Пунктирный овал обозначает трехуровневую подсистему.

$$\hat{H}_{lin} = \begin{pmatrix} 0 & f_H^* e^{i\omega t} & i f_V^* e^{i\omega t} & 0 & 0 \\ f_H e^{-i\omega t} & \hbar\omega_0 & 0 & \hbar\Omega_{H0} & 0 \\ -i f_V e^{-i\omega t} & 0 & \hbar\omega_0 & 0 & \hbar\Omega_{V0} \\ 0 & \hbar\Omega_{H0} & 0 & \hbar\omega_0 & 0 \\ 0 & 0 & \hbar\Omega_{V0} & 0 & \hbar\omega_0 \end{pmatrix},$$
(49)

где  $f_{H,V}(t) = -e^{i\omega t} \int d(\mathbf{r}) E_{H,V}(\mathbf{r},t) d^3 r$ ,  $E_H = \frac{E_+ + E_-}{\sqrt{2}}$ ,  $E_V = \frac{i(E_+ - E_-)}{\sqrt{2}}$ . Можно показать, что состояния  $|H1\rangle$ ,  $|V1\rangle$  будут испытывать феноменологическую дефазировку со скоростью светлых состояний  $\gamma_b$ , а состояния  $|H2\rangle$ ,  $|V2\rangle$  со скоростью  $\gamma_d$ . Если в качестве возбуждения используется свет, линейно поляризованный вдоль направления H ( $E_V = 0$ ), то можно выделить трехуровневую подсистему, динамика которой будет изолирована от других состояний. Схема уровней в обоих базисах, а также трехуровневая подсистема показаны на рисунке 45. Гамильтониан подсистемы в базисе  $\{0; H1; H2\}$  имеет вид:

$$\hat{H}_{H} = \begin{pmatrix} 0 & f_{H}^{*} e^{i\omega t} & 0\\ f_{H} e^{-i\omega t} & \hbar\omega_{0} & \hbar\Omega_{H0}\\ 0 & \hbar\Omega_{H0} & \hbar\omega_{0} \end{pmatrix}.$$
(50)

Таким образом динамика системы в протоколе ФЭ в геометриях HH→H и VV→V может быть определена с помощью решения уравнения Линдблада (39) для треухровневой системы. Аналогичные выводы можно провести для случая V-поляризованного возбуждения и детектирования. Для расчета сигнала ФЭ

103

нас будет интересовать только эволюция элементов матрицы плотности  $\rho_{01} = \rho_{10}^*$  и  $\rho_{02} = \rho_{20}^*$ . Будем считать, что система изначально находится в основном состоянии и  $\rho$  имеет единственный ненулевой элемент  $\rho_{00} = 1$ . Для наглядности расчетов примем площадь первого импульса  $\Theta = \frac{2}{\hbar} |f_H t_p| = \pi/2$ , а второго  $\pi$ . Тогда действие первого  $\pi/2$ -импульса приведет к изменению элементов  $\rho_{01}(0) = -\frac{i}{2}$ ,  $\rho_{02}(0) = 0$ . Второй  $\pi$ -импульс инвертирует систему  $\rho_{01}(\tau_{12}+0) = \rho_{01}(\tau_{12})^* + C_1$ ,  $\rho_{02}(\tau_{12}+0) = C_2$ , где  $\rho_{0j}(\tau_{12})$  и  $\rho_{0j}(\tau_{12}+0)$  обозначают значение элементов  $\rho$  до и после действия импульса, а  $C_1$  и  $C_2$  константы, не вносящие вклад в сигнал  $\Phi$ Э.

В промежутке между импульсами эволюция элементов  $\rho_{0j}(\tau_{12})$  под действием поперечного магнитного поля может быть определена в рамках приближения вращающейся волны по аналогии со случаем, описанным в разделе 2.1.4. Динамика преобразованной матрицы плотности  $\tilde{\rho}$  для системы с нулевой отстройкой ( $\omega = \omega_0$ ) будет определяться матрицей затухания  $\Gamma$  и гамильтонианом:

$$\hat{H}_T = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \hbar\Omega_{H0} \\ 0 & \hbar\Omega_{H0} & 0 \end{pmatrix}.$$
(51)

Из уравнения Линдблада для матрицы  $\tilde{\rho}$  можно получить замкнутую систему уравнений:

$$\begin{cases} i\dot{\tilde{\rho}}_{01} = -\Omega_{H0}\tilde{\rho}_{02} - i\gamma_b\tilde{\rho}_{01} \\ i\dot{\tilde{\rho}}_{02} = -\Omega_{H0}\tilde{\rho}_{01} - i\gamma_d\tilde{\rho}_{02} \end{cases}$$
(52)

Перейдем к переменным оптических уравнений Блоха  $u_{\alpha} = 2 \operatorname{Re}(\tilde{\rho}_{0\alpha}), v_{\alpha} = -2 \operatorname{Im}(\tilde{\rho}_{0\alpha}) \ (\alpha = 1, 2),$  отметив что  $u_1 = v_2 = 0$  в течение всего эксперимента:

$$\begin{cases} \dot{v}_1 = -\Omega_{H0}u_2 - \gamma_1 v_1 \\ \dot{u}_2 = \Omega_{H0}v_1 - \gamma_2 u_2 \end{cases}$$
 (53)

Действие первого  $\pi/2$ -импульса задает начальные условия для данной системы:  $v_1(0) = 1$  and  $u_2(0) = 0$ . Тогда эволюция системы в течение времени между импульсами  $t = \tau_{12}$  определяется решением:

$$\begin{cases} v_1(\tau_{12}) = e^{-\gamma \tau_{12}} \left( \cos(\Omega \tau_{12}) - \frac{\Delta \gamma}{\Omega} \sin(\Omega \tau_{12}) \right) \\ u_2(\tau_{12}) = e^{-\gamma \tau_{12}} \frac{\Omega_{H0}}{\Omega} \sin(\Omega \tau_{12}) \end{cases},$$
(54)

где  $\Omega = \sqrt{\Omega_{H0}^2 - \Delta \gamma^2}$  эффективная Ларморовская частота, совпадающая с  $\Omega_H$ при  $\delta_0 = 0$ . Выражение (54) определяет динамику как на промежутке между импульсами  $t = 0..\tau_{12}$ , так и после действия второго импульса  $t = \tau_{12}..2\tau_{12}$ , но с разными начальными условиями. Макроскопическая поляризация P согласно разделу 2.1.4 определяется выражением  $P = \text{Tr}(\hat{d}\rho) = 2\text{Re}(d\rho_{01}(\Omega_{H0}, t))$ . Выпишем итоговое выражение для амплитуды  $\Phi \exists$  при  $t = 2\tau_{12}$ :

$$P_{PE} \sim e^{-2\gamma\tau_{12}} \left| \cos(\Omega\tau_{12}) - \frac{\Delta\gamma}{\Omega} \sin(\Omega\tau_{12}) \right|^2.$$
(55)

Решение (55) для трехуровневой системы согласуется с решением для пятиуровневой системы (42) при  $\delta_0 = 0$ . Нули в кинетике ФЭ соответствуют нулям элемента  $v_1(\tau_{12})$ , ответственного за макроскопическую поляризацию. Отношение  $\Omega_{H0}/\Delta\gamma$  определяет знак подкоренного выражения для  $\Omega$ , и поэтому мы можем наблюдать осциллирующее поведение ( $\Omega_{H0} > \Delta\gamma$ ), критический режим ( $\Omega_{H0} = \Delta\gamma$ ) и интересующий нас апериодический режим поведения ( $\Omega_{H0} < \Delta\gamma$ ). Выпишем выражение для амплитуды ФЭ в этих режимах:

$$P_{PE} \sim \begin{cases} e^{-2\gamma\tau_{12}} \left(\cos(\Omega\tau_{12}) - \frac{\Delta\gamma}{\Omega}\sin(\Omega\tau_{12})\right)^2, & \Omega_{H0} > \Delta\gamma; \\ e^{-2\gamma\tau_{12}} (1 - \Delta\gamma\tau_{12})^2, & \Omega_{H0} = \Delta\gamma; \\ e^{-2\gamma\tau_{12}} \left(\cosh(|\Omega|\tau_{12}) - \frac{\Delta\gamma}{|\Omega|}\sinh(|\Omega|\tau_{12})\right)^2, & \Omega_{H0} < \Delta\gamma. \end{cases}$$
(56)

Поведение в данных режимах можно наглядно продемонстрировать с помощью изображения решения 54 в виде траектории эволюции на плоскости  $(v_1, u_2)$ , как показано на рисунке 46. При  $\Delta \gamma = 0$  эволюция системы с течением времени  $\tau_{12}$  представляет собой однородно скручивающуюся к центру спираль (рисунок 46(a)), пересечения оси  $u_2$  соответствуют нулям сигнала  $\Phi$ Э. Рисунок 46(b) демонстрирует, как при увеличении  $\Delta \gamma$  эта спираль сначала вытягивается (зеленая кривая), затем переходит через критический режим (красная кривая) к апериодическому поведению (синяя кривая). Апериодический режим выглядит как "бесконечное"падение в центр координат после пересечения оси ординат.

Анализ экспериментальных данных показывает, что пр<br/>и $B \leq 1$ Т в гео-



Рис. 46: Траектория эволюции элементов  $v_1, u_2$  при  $\Delta \gamma = 0$  (a) и в случае различающихся скоростях дефазировки (b) при  $\Omega/\Delta \gamma = 6$  (зеленый),  $\Omega/\Delta \gamma = 1$  (красный) и  $\Omega/\Delta \gamma = 0.5$  (синий).

метрии HH $\rightarrow$ H наблюдается именно апериодическое поведение затухания  $\Phi$ Э, причиной которого является разность скоростей дефазировки светлых и темных состояний. Напомним, что аналогичный результат можно получить для перпендикулярной геометрии VV $\rightarrow$ V. В этой геометрии мы также наблюдаем апериодическое поведение во всем доступном диапазоне магнитных полей, так как с ростом магнитного поля частота  $\Omega_V$  меняется слабо в отличие от монотонно растущей частоты  $\Omega_H$ .

Для демонстрации перехода через критический режим нами были проведены измерения кинетики затухания ФЭ в геометрии HH — H в диапазоне малых магнитных полей с малым шагом по величине поля. Результаты измерений приведены на рисунке 47. Они демонстрируют плавный переход от моноэкспоненциального затухания со временем дефазировки светлых экситонов к осциллирующему режиму через прохождение апериодического режима. Дополнительным доказательством апериодического поведения является наличие изолированного максимума сигнала, измеренного на длинной задержке  $\tau_{12} = 250$  пс при сканировании В. Положение максимума при  $B \approx 0.5$  T соответствует критическому режиму. Заметим, что сигнал в момент времени  $\tau_{12} = 150$  ps увеличивается примерно на порядок величины при включении поля  $B \approx 0.5$  Т. При этом согласно решению упрощенной модели (46) [136], не учитывающей отличие скоростей дефазировки, кинетика всегда должна быть ограничена сверху кривой затухания в нулевом магнитном поле. Экспериментальное наблюдение увеличения амплитуды и времени затухания сигнала при больших задержках явно демонстрирует проявление когерентной динамики долгоживущих темных экси-



Рис. 47: (а) Кинетики затухания амплитуды ФЭ, измеренные в поперечном магнитном поле B = 0 - 0.7 Т в геометрии НН $\rightarrow$ Н. Звездой отмечена точка измерений во время плавного сканирования поля. На вставке показана зависимость амплитуды ФЭ при  $\tau_{12} = 250$  пс как функция амплитуды поля B. (b) Экспериментально измеренная кинетика при B = 0.4 Т (красные точки) и результат аппроксимации при  $\Delta \gamma = 0$  (зеленый) и  $\Delta \gamma \neq 0$ .

тонов. Простая модель, аппроксимация которой показана зеленым цветом на рисунке 47(b), не может адекватно описать поведение на больших задержках. Именно учет разных скоростей дефазировки позволяет хорошо аппроксимировать результат измерений с помощью выражения 55. Можно показать, что в апериодическом режиме сигнал стремится к моноэкспоненциальному затуханию со скоростью темных экситонов  $\gamma_d$  при больших  $\tau_{12}$  [190]. Анализ кинетики затухания при B = 0.4 T дает значение для времени дефазировки темных экситонов  $T_2^d = 250 \pm 30$  пс, что в более чем восемь раз превышает время дефазировки светлых экситонов. Мы связываем такую большую разницу с отсутствием канала излучательной рекомбинации для темных экситонов, которая ограничивает когерентную динамику светлых экситонов. Таким образом мы показали, что применение протокола спин-зависимого ФЭ для ансамбля экситонов может быть использовано для увеличения времени оптической когерентности системы.



Рис. 48: Частота Ларморовской прецессии электрона (синий) и тяжелой дырки (красный), извлеченная из кинетик затухания спин-зависимого ФЭ, как функция приложенного магнитного поля с изображением соответствующих линейной и кубической аппроксимаций.

### 5.8 Ларморовская прецессия в сигнале фотонного эха

При условии  $\Omega_{H0} = \Omega_{V0}$  кинетики затухания в коллинеарных геометриях должны совпадать, однако на рисунке 41 мы явно видим разницу между измерениями в геометриях НН—>Н и VV—>V. Этот факт указывает на наличие и электронной, и дырочной спиновой прецессии, протекающих во время эксперимента спин-зависимого ФЭ. Поэтому для получения более полной информации о спиновой динамике электрона и дырки в экситоне необходимо проводить измерения в обеих геометриях.

Рассмотренная нами модель (42) позволяет провести аппроксимацию данных из рисунка 41, которая дает информацию о частотах Ларморовской прецессии спина электрона  $\omega_e$  и дырки  $\omega_h$  в экситоне. Результаты анализа приведены на рисунке 48. Частота  $\omega_e$  растет линейно с ростом магнитного поля. Из аппроксимации данных выражением  $\omega_e = \frac{g_{e,\perp}\mu_B B}{\hbar}$  мы получаем значение для электронного g-фактора в плоскости ямы  $|g_{e,\perp}| = 0.44 \pm 0.05$ . Полученное значение совпадает с таковым для объемного GaAs [210, 213, 214] и близко к значениям для тонких KЯ InGaAs/GaAs [215, 216]. Полученное значение указывает на то, что электронная волновая функция в основном распределена внутри барьеров ямы GaAs, что ожидаемо в случае низкого процентного содержания индия в слое ямы и малой толщины.
Измерения также проявляют наличие дырочной спиновой прецессии. Более того, частота  $\omega_h$  нелинейно зависит от величины приложенного магнитного поля. Соответствующий дырочный *g*-фактор вдоль плоскости ямы становится соизмерим с таковым для электрона при B = 6 Т и достигает максимального значения  $|g_{h,\perp}| \approx 0.3$ . Известно, что дырочный *g*-фактор сильно анизотропен в наноструктурах на основе GaAs [217] вследствие расщепления дырочных подзон с проекцией спина  $\pm 3/2$  и  $\pm 1/2$  из-за понижения размерности структуры. Поэтому тяжелые дырки не испытывают зеемановского расщепления в поперечном поле из-за нулевого матричного элемента операторов  $J_x = J_y = 0$  [143, 215, 216]. Незеемановское взаимодействие тяжелых дырок допустимо симметрией гамильтониана Латтинжера и описывается кубическими членами  $J_x^3, J_y^3$ и коэффициентом Латтинжера q [217, 218]. Последний также считается малой поправкой или совсем не учитывается для простоты. Несмотря на это, в литературе есть несколько исследований об обнаружении ненулевого значения  $g_{h,\perp}$ , которое в основном было связано либо с коэффициентом q [219], либо наличием анизотропных возмущений [130, 131, 217].

Полученное нами значение  $|g_{h,\perp}|$  находится в диапазоне опубликованных значений для KT InGaAs/GaAs 0.15 – 0.6, в которых имеет место механические напряжения и подмешивание легкодырочных состояний [220, 221]. Недавно обнаруженная зависимость дырочного *g*-фактора вдоль плоскости ямы от величины приложенного магнитного поля являлась следствием смешения состояний тяжелой и легкой дырки [222]. Кроме того, третий порядок теории возмущения может вносить вклад в  $|g_{h,\perp}|$  [218]. Экспериментальные точки хорошо аппроксимируются кубической зависимостью, приведенной на рисунке 48, однако полученный коэффициент перед кубическим членом на три порядка больше, чем ожидаемое значение, которое определяется в том числе расщеплением тяжелых и легких дырок. В нашем случае все вышеупомянутые механизмы могут иметь место, и для идентификации отдельных вкладов необходимы дополнительные измерения, как, например, были проведены в работе по спин-зависимому эху в КЯ CdTe/(Cd,Mg)Te и KT (In,Ga)As/GaAs [130, 131].

Отметим, что преимуществом метода спин-зависимого ФЭ по сравнению с другими техниками исследования спиновой когерентной динамики является возможность измерения частот дырочной и электронной Ларморовской прецессии в диапазоне малых магнитных полей, поскольку сигнал испытывает биения на суммарной или разностной частоте в зависимости от поляризационной геометрии. Измерения спин-зависимого  $\Phi$ Э позволяют определить только абсолютное значение *g*-факторов, и мы видим что они оба одного знака в данном случае. Поскольку в предыдущих исследованиях было определено, что электронный *g*-фактор имеет отрицательный знак [215, 216], то дырочный *g*-фактор так же отрицателен.

Нули сигнала ФЭ ожидаются при условии, когда поляризация в оптически активных состояниях в момент прихода второго возбуждающего импульса  $t = \tau_{12}$  равна нулю ( $\rho_{01} = \rho_{02} = 0$ ). Данные показывают (рисунок 41), что осциллирующее затухание не достигает нулевого значения. Как минимум два механизма могут привести к такому поведению. Первый связан с обменным взаимодействием, ответственным за расщепление светлых и темных экситонных состояний в нулевом внешнем поле. Из аппроксимации данных, показанной на рисунке 43 мы можем дать верхнюю оценку для величины  $\delta_0 < 10$  мкэВ. Второй механизм связан с наличием неоднородного разброса q-факторов, который может достигать одной трети значения *q*-фактора тяжелой дырки в КТ InGaAs/GaAs [223]. Неоднородность приводит к размытию осцилляций в области нуля сигнала ФЭ и снижению контраста осцилляций при большой величине поля и временной задержке. Разброс может быть включен в модель с помощью свертки выражения для амплитуды ФЭ с Гауссовой функцией распределения g-фактора тяжелой дырки  $P_{\Sigma} \sim \int P e^{-\frac{(g_h - g_{h0})^2}{2\Delta g_h^2}} dg_h$ , где  $P_{\Sigma}$  – интегральная амплитуда  $\Phi \Im$ , P – амплитуда  $\Phi \Im$  от подансамбля с  $g_h$ ,  $g_{h0}$  – среднее значение g-фактора и <br/>  $\Delta g_h$  – разбросg-фактора. Рисунок 43 показывает наиболе<br/>е близкую аппроксимацию с величиной разброса  $\frac{\Delta g_h}{g_h} = 0.03$ . Так как оба этих механизма проявляются в приведенных экспериментах схожим образом, мы можем дать лишь верхние оценки для величин  $\delta_0$  и  $\frac{\Delta g_h}{q_h}$ .

### 5.9 Выводы

В данной главе было продемонстрировано экспериментальное наблюдение осциллирующего поведения сигнала спин-зависимого двухимпульсного ФЭ от ансамбля экситонов в тонкой КЯ (In,Ga)As/GaAs при приложении внешнего поперечного магнитного поля в геометрии Фохта. Осцилляции связаны с Ларморовской прецессией спина электрона и дырки, образующих экситон. Наличие долгоживущих темных экситонных состояний привело к наблюдению нового апериодического режима поведения сигнала спин-зависимого  $\Phi$ Э. Время когерентности системы в таком режиме может быть увеличено более чем в 8 раз за счет смешивания светлых и темных экситонных состояний. Разработанная теоретическая модель корректно описывает все характерные особенности поведения системы и позволяет получить богатый набор информации о времени дефазировки светлых и темных экситонов, *g*-факторах электрона и дырки и константе обменного взаимодействия. Высокая точность метода в области сравнительно малых магнитных полей позволила не только обнаружить ненулевой дырочный *g*-фактор вдоль плоскости ямы, но и проявить нелинейную зависимость Ларморовской прецессии дырочного спина от приложенного поперечного магнитного поля.

#### Заключение

Настоящая диссертация демонстрирует успешное применение методики пикосекундного фотонного эха и ее дальнейшее развитие для комплексного экспериментального исследования когерентной оптической динамики экситонов и трионов в полупроводниковых квантовых ямах в ИК и УФ спектральных диапазонах. Основные результаты диссертации следующие:

- 1. Мы показали, как с помощью техники двух- и трехимпульсного фотонного эха с использованием узко-спектральных лазерных импульсов можно комплексно исследовать характер протекания когерентной динамики экситонов и трионов в периодической структуре с 5 КЯ ZnO/(Zn,Mg)O в пикосекундном временном диапазоне даже при наличии большого неоднородного уширения. Используемый нами метод наглядно показывает возможность разделения вкладов различных механизмов в фазовую и энергетическую релаксацию ансамбля квазичастиц. Экспериментально была показана разница в характере динамики экситонов и трионов двух типов А и В. Субпикосекундная динамика частиц типа В определяется быстрой релаксацией в состояния типа А. Наиболее долгоживущим состоянием являются трионы  $T_A$ , для которых время  $T_2$  находится в диапазоне от 8 до 60 пс, а время  $T_1$ в диапазоне от 28 до 102 пс. Основной канал дефазировки трионов T<sub>A</sub> при T = 1.5 K не связан с энергетической релаксацией, а определяется чистой дефазировкой. Температурные измерения позволили выделить вклад в дефазировку трионов  $T_A$ , связанный с рассеянием на акустических фононах. Нам удалось продемонстрировать сильное уменьшение скоростей энергетической и чистой фазовой релаксации с ростом степени локализации трионов Т<sub>А</sub> при низкой температуре. Мы связываем такое поведение с уменьшением влияния упругого рассеяния на неровностях интерфейса квантовой ямы и безызлучательной энергетической релаксацией внутри неоднородно уширенного трионного ансамбля.
- 2. В работе приведены первые оригинальные экспериментальные исследования когерентной динамики экситонов в периодической структуре со ста КЯ (In,Ga)N/GaN в пикосекундном временном диапазоне и ультрафиолетовой спектральной области методом фотонного эха. Исследования показали, что

локализованные экситоны в таких структурах сохраняют оптическую когерентность на временах сотен пикосекунд, а время энергетической релаксации  $T_1$  достигает 1 нс при увеличении локализации. Температурные исследования проявили нелинейный характер увеличения скорости дефазировки экситонов. Полученные экспериментальные результаты указывают на сильную локализацию экситонов на флуктуациях потенциала КЯ, характер которой подобен локализации экситонов в КТ.

3. Нами было впервые экспериментально продемонстрировано осциллирующее поведение сигнала спин-зависимого двухимпульсного фотонного эха от ансамбля экситонов в тонкой КЯ (In,Ga)As/GaAs при приложении внешнего поперечного магнитного поля в геометрии Фохта. Теоретическая модель, описывающая экспериментальные данные, связывает наблюдаемые осцилляции с Ларморовской прецессией спина электрона и дырки, образующих экситон. Эксперимент стал возможен только благодаря подбору высококачественной структуры, в которой время фазовой релаксации экситонов достаточно долгое для совершения периода прецессии. Мы рассматриваем успешную реализацию протокола спин-зависимого ФЭ на ансамбле экситонов как демонстрацию возможности управления оптической когерентностью с помощью внешнего магнитного поля. Наличие долгоживущих темных экситонных состояний привело к наблюдению нового апериодического режима поведения сигнала спин-зависимого ФЭ. Время когерентности системы в таком режиме может быть увеличено с 30 до 250 пс за счет смешивания светлых и темных экситонных состояний. Анализ в рамках разработанной теоретической модели позволил корректно описать все характерные особенности поведения системы и получить богатый набор информации о времени дефазировки светлых и темных экситонов, *q*-факторах электрона и дырки и константе обменного взаимодействия. Высокая точность метода в области сравнительно малых магнитных полей позволила не только обнаружить ненулевой дырочный *g*-фактор вдоль плоскости ямы, но и проявить нелинейную зависимость Ларморовской прецессии дырочного спина от приложенного поперечного магнитного поля.

#### Благодарность

Автор выражает искреннюю благодарность Капитонову Юрию Владимировичу, Полтавцеву Сергею Владимировичу и Юговой Ирине Анатольевне за организацию научной работы и руководство в ходе аспирантуры, Козлову Глебу Геннадьевичу за плодотворное обсуждение экспериментальных результатов и теоретических аспектов, Строганову Борису Витальевичу за ценные советы по экспериментальной технике. Настоящая работа была выполнена с использованием оборудования ресурсного центра Нанофотоника СПбГУ, экспериментальная часть работы была поддержана Российским Научным Фондом (22-22-00439), теоретический анализ был поддержан Министерством Науки и Высшего Образования Российской Федерации (Мегагрант № 075-15-2022-1112).

Автор крайне признателен своей жене Юлии, родителям, родным и близким за поддержку в период подготовки диссертации.

# Приложение А. Дополнительные теоретические аспекты

## А.1 Формализм матрицы плотности

Для описания квантовых систем как правило используется формализм волновых функций состояний и их разложение по базисным функциям стационарных состояний. В случае же квантовых смесей более удобным подходом оказывается описание с помощью матрицы плотности, формализм которой подробно описан в монографиях [224, 225].

Рассмотрим систему в чистом квантовом состоянии, для которого можно написать волновую функцию  $\Psi$  в явном виде с учетом всех фазовых множителей. Для такой системы наблюдаемая величина A определяются через квантовомеханическое среднее по правилу:

$$\langle A \rangle = \langle \Psi | \hat{A} | \Psi \rangle \,, \tag{57}$$

где  $\hat{A}$  - эрмитов оператор физической величины A. Выбрав ортонормированный базис  $|n\rangle$ , напишем разложение по базису волновой функции  $|\Psi\rangle = \sum_{n} c_n |n\rangle$  и подставим в выражение 57. Тогда

$$\langle A \rangle = \langle \sum_{m} c_{m}^{*} m | \hat{A} | \sum_{n} c_{n} n \rangle = \sum_{n,m} c_{m}^{*} c_{n} \langle m | \hat{A} | n \rangle = \sum_{n,m} c_{m}^{*} c_{n} A_{mn}$$
(58)

Введем некую матрицу, элементы которой определяются коэффициентами разложения  $\Psi$  по базису, обратив внимание на порядок коэффициентов,  $\rho = \sum_{n,m} c_n c_m^* |n\rangle \langle m| = |\Psi\rangle \langle \Psi|$ ). В итоге получаем:

$$\langle A \rangle = \sum_{n,m} \rho_{nm} A_{mn} = \sum_{n} (\rho A)_{nn} = \operatorname{Tr}(\rho A) = \operatorname{Tr}(A\rho)$$
 (59)

Мы видим, что для вычисления среднего значения наблюдаемой величины  $\langle A \rangle$  достаточно знать матрицу плотности состояния  $\rho$  и матрицу оператора физической величины  $\hat{A}$ . Отметим, что диагональные члены  $\rho_{nn}$  равны населенности соответствующего уровня, как видно из определения  $\rho$ . В случае чистого состояния системы, вычисления средних с помощью матрицы плотности эквивалентны вычислению через волновую функцию  $\Psi$ . Однако ситуция существенно меняется при переходе от чистого состояния к смешанному, которое невозможно разложить в линейную комбинацию по базисным состояниям  $|n\rangle$ , так как коэффициенты  $c_n$  в общем случае неизвестны.

Рассмотрим ансамбль из N совершенно одинаковых замкнутых систем. Для каждой такой системы можно определить волновую функцию  $\Psi$ , но узнать ее, например, невозможно. Допустим, нам известно только распределение вероятностей  $\omega_{\alpha}$  ( $\sum_{\alpha} \omega_{\alpha} = 1$ ) нахождения системы в некотором состоянии  $\psi_{\alpha}$ . Это распределение одинаково для всех систем ввиду идентичности систем. Тогда среди них будет примерно  $N\omega_{\alpha}$  систем в состоянии  $\psi_{\alpha}$  для каждого  $\alpha$  (вероятности имеют смысл статистического веса каждого среднего значения). Нас интересует среднее значение величины  $\langle A \rangle_{\alpha}$  по ансамблю, то есть усредненное по всем N системам.

$$\langle A \rangle_{\alpha} = \frac{1}{N} \sum_{\alpha} N \omega_{\alpha} \langle A \rangle_{\Psi_{\alpha}}$$
(60)

Подставим выражение  $\langle A \rangle_{\Psi_{\alpha}} = \sum_{n,m} c_m^{\alpha*} c_n^{\alpha} A_{mn}$  в (60), сократив N:

$$\langle A \rangle_{\alpha} = \sum_{\alpha,n,m} \omega_{\alpha} c_{m}^{\alpha*} c_{n}^{\alpha} A_{mn} = \sum_{n,m} A_{mn} \underbrace{\sum_{\alpha} \omega_{\alpha} c_{m}^{\alpha*} c_{n}^{\alpha}}_{=\widetilde{\rho}_{nm}} = \sum_{n,m} A_{mn} \widetilde{\rho}_{nm} = \operatorname{Tr}(A\widetilde{\rho}) \quad (61)$$

Таким образом мы можем составить матрицу плотности для случая, когда неизвестно точное состояние  $\Psi$ , но есть лишь набор возможных состояний  $\{\Psi\}_{\alpha}$  и вероятностей нахождения в них  $\{\omega\}_{\alpha}$ . При этом задачи о нахождении одной системы в смешанном состоянии или ансамбля копий этой системы, каждая из которых находится в определенном, но неизвестном состоянии в соответствии с распределением вероятностей  $\omega_{\alpha}$ , эквивалентны.

# А.2 Оператор эволюции и уравнение Лиувилля

Уравнение Шредингера для волновой функции  $\psi$  определяет эволюцию квантовой системы. Альтернативным способом является введение оператора эволюции системы U(t) [224], переводящего исходное состояние  $\psi(0)$  в состояние  $\psi(t)$ :

$$\psi(t) = U(t)\psi(0) \tag{62}$$

В таком случае уравнение Шредингера сводится к операторному уравнению:

$$i\hbar \frac{\partial U(t)}{\partial t} = H(t)U(t), \ U(0) = I$$
(63)

Для Гамильтониана H, не зависящего от времени в явном виде, решение уравнения (62) имеет вид:

$$U(t) = e^{-(i/\hbar)Ht} \tag{64}$$

Таким образом эволюцию системы можно определить с помощью либо решения уравнения Шредингера, либо нахождения вида оператора эволюции U(t).

Рассмотрим теперь ансамбль квантовомеханических систем, описываемый с помощью матрицы плотности согласно (61):

$$\rho = \sum_{\alpha} \omega_{\alpha} |\psi_{\alpha}\rangle \langle\psi_{\alpha}|.$$
(65)

Функции  $\psi_{\alpha}$  эволюционируют в соответствии выражением (62), поэтому оператор эволюции U(t) определяет временное поведение и матрицы плотности:

$$\rho(t) = U(t)\rho(0)U^{*}(t)$$
(66)

Если гамильтониан не зависит от времени явно, то согласно (64)

$$\rho(t) = e^{-(i/\hbar)Ht}\rho(0)e^{(i/\hbar)Ht}$$
(67)

Продифференцировав (66), можно получить квантовое уравнение Лиувилля:

$$i\hbar \frac{\partial \rho(t)}{\partial t} = [H(t), \rho(t)].$$
(68)

Мы показали, что эволюцию матрицы плотности можно определить либо путем решения уравнения Лиувилля (68), либо путем нахождения явного вида оператора эволюции U(t) и его подстановки в уравнение (66).

# Список сокращений

КЯ - квантовая яма

МКЯ - периодическая структура с квантовыми ямами

КТ - квантовая точка

ЧВС - четырехволновое смешение

 $\Phi \Theta$  - фотонное эхо

- $C\Phi \Theta$  стимулированное фотонное эхо
- $\Phi\Pi$  фотолюминесценция

LH - легкая дырка

НН - тяжелая дырка

 $\mathbf{TR}\text{-}\mathbf{FWM}$  - четырехволновое смешение с временным разрешением

 $\mathbf{TI}\text{-}\mathbf{FWM}$  - четырехволновое смешение, интегрированное по времени

 $\mathbf{FWHM}$  - полная ширина на полувысоте

 $\mathbf{HWHM}$  - полуширина на полувысоте

## Список литературы

- 1. Frenkel J. On the transformation of light into heat in solids. I // Phys. Rev. 1931. T. 37, Nº 1. C. 17–44.
- 3. Wannier G. H. The structure of electronic excitation levels in insulating crystals // Phys. Rev. 1937. T. 52, № 3. C. 191-197.
- Mott N. F., Littleton M. J. Conduction in polar crystals. I. Electrolytic conduction in solid salts // Trans. Faraday Soc. 1938. T. 34, № 9. C. 485-499.
- Mott N. F. Conduction in polar crystals. II. The conduction band and ultraviolet absorption of alkali-halide crystals // Trans. Faraday Soc. - 1938. -T. 34. - C. 500-506.
- 6. *Гросс Е. Ф., Каррыев Н. А.* Оптический спектр экситона // Доклады Академии наук СССР. 1952. Т. 84. С. 471.
- Abiyasa A. [и др.]. Theoretical Investigation of Excitonic Gain in ZnO– Mg<sub>x</sub>Zn<sub>1-x</sub>O Strained Quantum Wells // IEEE J. Quantum Electron. – 2006. – Май. – Т. 42, № 5. – С. 455–463.
- Khramtsov E. S. [и др.]. Radiative decay rate of excitons in square quantum wells: Microscopic modeling and experiment // J. Appl. Phys. — 2016. — Май. — Т. 119, № 18. — С. 184301.
- 9. Ivchenko, Eugenius L. Optical Spectroscopy of Semiconductor Nanostructures. — Harrow, UK : Alpha Science International, Ltd, 2005.
- Claus Klingshirn. Semiconductor Optics. Heidelberg : Springer-Verlag Heidelberg, 2005.
- Kärtner F. X., Ippen E. P., Cundiff S. T. Femtosecond Laser Development // Femtosecond Opt. Freq. Comb Princ. Oper. Appl. – Boston : Kluwer Academic Publishers. – C. 54–77.
- Sibbett W., Lagatsky A. A., Brown C. T. A. The development and application of femtosecond laser systems // Opt. Express. - 2012. - Mapt. - T. 20, № 7. - C. 6989.

- Hegarty J., Sturge M. D. Studies of exciton localization in quantum-well structures by nonlinear-optical techniques // J. Opt. Soc. Am. B. — 1985. — Июль. — Т. 2, № 7. — С. 1143.
- Hegarty J. Excitons in GaAs Quantum Wells: Interface Disorder and Mobility //. - 1986. - C. 280-288.
- Chemla D. S., Miller D. A. B. Room-temperature excitonic nonlinear-optical effects in semiconductor quantum-well structures // J. Opt. Soc. Am. B. – 1985. — Июль. — Т. 2, № 7. — С. 1155.
- Peyghambarian N., Gibbs H. M. Optical nonlinearity, bistability, and signal processing in semiconductors // J. Opt. Soc. Am. B. 1985. Июль. Т. 2, № 7. С. 1215.
- 17. Shen Y. Basic considerations of four-wave mixing and dynamic gratings // IEEE J. Quantum Electron. — 1986. — ABΓ. — T. 22, № 8. — C. 1196—1203.
- Shah J. Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures. T. 115. — Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 1996. — (Springer Series in Solid-State Sciences).
- 19. Armstrong J. A. [и др.]. Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric // Phys. Rev. 1962. Сент. Т. 127, № 6. С. 1918—1939.
- 20. Шен И. Р. Принципы нелинейной оптики / под ред. С. А. Ахманова. Москва : Наука, 1989.
- Копвиллем У. Х., Нагибаров В. Р. Световое эхо на парамагнитных кристаллах // Физика металлов и металловедение. 1963. Т. 15, № 2. С. 313.
- 22. *Kurnit N. A.*, *Abella I. D.*, *Hartmann S. R.* Observation of a photon echo // Phys. Rev. Lett. 1964. T. 13, № 19. C. 567—568.
- Cundiff S. T. Coherent spectroscopy of semiconductors // Opt. Express. Washington, D.C., 2008. — Март. — Т. 16, № 7. — С. 4639.
- 24. Poltavtsev S. V. [и др.]. Photon Echo from Localized Excitons in Semiconductor Nanostructures // Phys. Solid State. — 2018. — Авг. — T. 60, № 8. — С. 1635—1644.

- 25. *Hellwarth R. W.* Generation of time-reversed wave fronts by nonlinear refraction // J. Opt. Soc. Am. 1977. Янв. Т. 67, № 1. С. 1.
- 26. Cronin-Golomb M. [и др.]. Theory and Applications of Four-Wave Mixing in Photorefractive Media // IEEE J. Quantum Electron. 1984. Т. 20, № 1. С. 12—30.
- Zel'dovich B. Y., Pilipetsky N. F., Shkunov V. V. OPC in Four-Wave Mixing // Princ. Phase Conjug. - 1985. - C. 144-170.
- 28. He G. S. Optical phase conjugation: Principles, techniques, and applications // Prog. Quantum Electron. - 2002. - T. 26, № 3. - C. 131-191.
- Fleuret J. Optical computing units using four-wave mixing and amplitude coding // Appl. Opt. - 1984. - T. 23, № 10. - C. 1609.
- Samartsev V. V., Zuikov V. A., Nefed'ev L. A. Optical memory based on long-lived photon echo (review) // J. Appl. Spectrosc. — 1993. — Нояб. — Т. 59, № 5/6. — С. 766—791.
- Samartsev V. V. Coherent optical spectroscopy of promising materials for solid-state optical processors // Laser Phys. - 2010. - Φebp. - T. 20, № 2. -C. 383-446.
- 32. *Маныкин Э. А., В. С. В.* Оптическая эхо-спектроскопия / под ред. С. Ахманов. Москва : Наука, 1984.
- 33. *Tittel W.* [и др.]. Photon-echo quantum memory in solid state systems // Laser Photon. Rev. 2010. Май. Т. 4, № 2. С. 244—267.
- 34. Moiseev S. A. Photon-echo quantum memory with complete use of natural inhomogeneous broadening // Phys. Rev. A At. Mol. Opt. Phys. 2011. T. 83, № 1. C. 1-7.
- 35. Minnegaliev M. M. [и др.]. Quantum memory in the revival of silenced echo scheme in an optical resonator // Quantum Electron. 2018. Окт. Т. 48, № 10. С. 894—897.
- 36. Buluta I., Ashhab S., Nori F. Natural and artificial atoms for quantum computation // Reports Prog. Phys. 2011. Окт. Т. 74, № 10. С. 104401.

- 37. Loss D., DiVincenzo D. P. Quantum computation with quantum dots // Phys.
   Rev. A. 1998. Янв. Т. 57, № 1. С. 120-126.
- Puri S., McMahon P. L., Yamamoto Y. Universal logic gates for quantum-dot electron-spin qubits using trapped quantum-well exciton polaritons // Phys. Rev. B. - 2017. - Mapt. - T. 95, № 12. - C. 125410.
- 39. Widhalm A. [и др.]. Ultrafast electric phase control of a single exciton qubit // Appl. Phys. Lett. 2018. Т. 112, № 11.
- Henneberger F., Benson O. Semiconductor quantum bits. Singapore : Pan Stanford Publishing Pte. Ltd., 2008.
- 41. Puls J., Sadofev S., Henneberger F. Trions in ZnO quantum wells and verification of the valence band ordering // Phys. Rev. B. 2012. Янв. Т. 85, № 4. С. 041307.
- 42. *Kim J.* [и др.]. Charged carrier spin dynamics in ZnO quantum wells and epilayers // Phys. Rev. B. 2016. Янв. Т. 93, № 4. С. 045306.
- Declerck G., Klaassen F. Physics of Quantum Well Devices. T. 7. Dordrecht : Kluwer Academic Publishers, 2002. – (Solid-State Science and Technology Library).
- 44. Esmaeil Zadeh I. [и др.]. Superconducting nanowire single-photon detectors: A perspective on evolution, state-of-the-art, future developments, and applications // Appl. Phys. Lett. — 2021. — Т. 118, № 19.
- 45. Воробъев Л. Е. [и др.]. Оптические свойства наноструктур / под ред. Е. Л. Ивченко, Л. Е. Воробьев. Санкт-Петербург : Наука, 2001.
- 46. *Гапоненко С.* [и др.]. Оптика Наноструктур. 2005. С. 326.
- Harrison P., Valavanis A. Quantum Wells, Wires and Dots. Chichester, UK : John Wiley & Sons, Ltd, 05.2016.
- 48. Optical Properties of Semiconductor Nanostructures / под ред. М. L. Sadowski, M. Potemski, M. Grynberg. Dordrecht : Springer Netherlands, 2000.
- Aliev G. N. [и др.]. High-temperature efficiency of exciton-polariton processes in semiconductors and 2D systems // Int. Conf. Excit. Process. Condens. Matter. T. 2362 / под ред. J. Singh. — 02.1995. — С. 561—568.

- Belov P. Energy spectrum of excitons in square quantum wells // Phys. E Low-dimensional Syst. Nanostructures. — 2019. — Авг. — Т. 112. — С. 96— 108.
- Belov P. A., Yakovlev S. L. Energy Levels of Excitons in Square Quantum Wells // Recent Prog. Few-Body Phys. - 2020. - C. 29-33.
- Hopfield J. J., Thomas D. G. Fine structure and magneto-optic effects in the exciton spectrum of cadmium sulfide // Phys. Rev. - 1961. - T. 122, № 1. -C. 35-52.
- Andreani L. C., Tassone F., Bassani F. Radiative lifetime of free excitons in quantum wells // Solid State Commun. - 1991. - Mapt. - T. 77, № 9. -C. 641-645.
- 54. Citrin D. S. Radiative lifetimes of excitons in quantum wells: Localization and phase-coherence effects // Phys. Rev. B. 1993. Φebp. T. 47, № 7. C. 3832-3841.
- Pelant I., Valenta J. Luminescence Spectroscopy of Semiconductors. Oxford : Oxford University PressOxford, 02.2012.
- 56. Dang G. T., Kanbe H., Taniwaki M. Photoluminescence of an Al<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As/GaAs multiple quantum well in the temperature range from 5 to 400 K // J. Appl. Phys. - 2009. - T. 106, № 9.
- 57. Jiang D. S., Jung H., Ploog K. Temperature dependence of photoluminescence from GaAs single and multiple quantum-well heterostructures grown by molecular-beam epitaxy // J. Appl. Phys. — 1988. — T. 64, № 3. — C. 1371— 1377.
- 58. Bayer M. [и др.]. Fine structure of neutral and charged excitons in selfassembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots // Phys. Rev. B. — 2002. — Май. — Т. 65, № 19. — С. 195315.
- 59. Brunner K. [и др.]. Sharp-line photoluminescence of excitons localized at GaAs/AlGaAs quantum well inhomogeneities // Appl. Phys. Lett. 1994. T. 64, № 24. C. 3320—3322.
- Brunner K. [и др.]. Sharp-line photoluminescence and two-photon absorption of zero-dimensional biexcitons in a GaAs/AlGaAs structure // Phys. Rev. Lett. — 1994. — Т. 73, № 8. — С. 1138—1141.

- Kawai H., Kaneko K., Watanabe N. Photoluminescence of AlGaAs/GaAs quantum wells grown by metalorganic chemical vapor deposition // J. Appl. Phys. - 1984. - T. 56, № 2. - C. 463-467.
- 62. Jung H., Fischer A., Ploog K. Photoluminescence of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs quantum well heterostructures grown by molecular beam epitaxy II. Intrinsic free-exciton nature of quantum well luminescence // Appl. Phys. A Solids Surfaces. 1984. T. 33, № 2. C. 97-105.
- Devine R. L. Photoluminescence characterisation of InGaAs/GaAs quantum well structures // Semicond. Sci. Technol. — 1988. — T. 3, № 12. — C. 1171— 1176.
- Sekiguchi Y., Miyazawa S. I., Mizutani N. Photoluminescence from GaAs/AlGaAs quantum wells grown at 350°C by conventional molecular beam epitaxy // Jpn. J. Appl. Phys. - 1991. - T. 30, 10A. - C. L1726-L1728.
- 65. Vinattieri A. [и др.]. Picosecond dynamics of resonantly-excited excitons in GaAs quantum wells // Solid State Commun. 1993. Т. 88, № 3. С. 189—193.
- 66. Damen T. C. [и др.]. Dynamics of exciton formation and relaxation in GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. 1990. Окт. Т. 42, № 12. С. 7434—7438.
- 67. Trifonov A. V. [и др.]. Nanosecond Spin Coherence Time of Nonradiative Excitons in GaAs/AlGaAs Quantum Wells // Phys. Rev. Lett. 2019. Апр. Т. 122, № 14. С. 147401.
- 68. Eccleston R. [и др.]. Exciton dynamics in a GaAs quantum well // Phys. Rev.
  B. 1991. Июль. Т. 44, № 3. С. 1395—1398.
- Blom P. W. M. [и др.]. Selective exciton formation in thin GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As quantum wells // Phys. Rev. Lett. 1993. Дек. Т. 71, № 23. С. 3878—3881.
- 70. Vinattieri A. [и др.]. Picosecond dynamics of resonantly-excited excitons in GaAs quantum wells // Solid State Commun. 1993. Окт. Т. 88, № 3. С. 189—193.

- 71. Deveaud B. [и др.]. Enhanced radiative recombination of free excitons in GaAs quantum wells // Phys. Rev. Lett. 1991. Окт. Т. 67, № 17. С. 2355—2358.
- 72. Hanamura E. Rapid radiative decay and enhanced optical nonlinearity of excitons in a quantum well // Phys. Rev. B. 1988. Июль. Т. 38, № 2. С. 1228—1234.
- 73. Feldmann J. [и др.]. Linewidth dependence of radiative exciton lifetimes in quantum wells // Phys. Rev. Lett. 1987. Нояб. Т. 59, № 20. С. 2337—2340.
- 74. Colocci M. [и др.]. Temperature Dependence of Exciton Lifetimes in GaAs/AlGaAs Quantum Well Structures // Europhys. Lett. — 1990. — Июль. — Т. 12, № 5. — С. 417—422.
- 75. Eccleston R. [и др.]. Density-dependent exciton radiative lifetimes in GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. 1992. T. 45, № 19. C. 11403—11406.
- 76. Wang H. [и др.]. Spontaneous Emission of Excitons in GaAs Quantum Wells: The Role of Momentum Scattering // Phys. Rev. Lett. — 1995. — Апр. — T. 74, № 15. — С. 3065—3068.
- Fox M. Optical Properties of Solids. New York : Oxford University Press, 2010.
- 78. Benedict M. G., Trifonov E. D. Coherent reflection as superradiation from the boundary of a resonant medium // Phys. Rev. A. 1988. Ceht. T. 38, № 6. C. 2854-2862.
- Poltavtsev S. V., Stroganov B. V. Experimental investigation of the oscillator strength of the exciton transition in GaAs single quantum wells // Phys. Solid State. - 2010. - Ceht. - T. 52, № 9. - C. 1899–1905.
- Poltavtsev S. V. [и др.]. Extremely low inhomogeneous broadening of exciton lines in shallow (In,Ga)As/GaAs quantum wells // Solid State Commun. — 2014. — Т. 199. — С. 47—51.
- Poltavtsev S. V., Ovsyankin V. V., Stroganov B. V. Coherent resonant scattering and free induction decay of 2D-excitons in GaAs SQW // Phys. status solidi. - 2009. - Φевр. - Т. 6, № 2. - С. 483-487.

- 82. Poltavtsev S. V. [и др.]. Investigation of the mechanisms of exciton coherence relaxation in single GaAs/AlGaAs quantum wells by the methods of excitonic induction // Opt. Spectrosc. — 2008. — Окт. — Т. 105, № 4. — С. 511—516.
- 83. Shapochkin P. Y. [и др.]. Excitonic Probe for Characterization of High-Quality Quantum-Well Heterostructures // Phys. Rev. Appl. — 2019. — Сент. — Т. 12, № 3. — С. 034034.
- 84. Chemla D. Ultrafast Transient Nonlinear Optical Processes in Semiconductors // Nonlinear Opt. Semicond. I / под ред. Е. Garmire, A. Kost. — Elsevier, 1998. — Гл. 3. С. 175—256.
- Schmitt-Rink S., Chemla D. S., Miller D. A. Linear and nonlinear optical properties of semiconductor quantum wells // Adv. Phys. - 1988. - T. 38, № 2. - C. 89-188.
- 86. Trifonov A. V. [и др.]. Nontrivial relaxation dynamics of excitons in highquality InGaAs/GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. — 2015. — Март. — Т. 91, № 11. — С. 115307.
- 87. *Kurdyubov A. S.* [и др.]. Optical control of a dark exciton reservoir // Phys. Rev. B. — 2021. — Июль. — Т. 104, № 3. — С. 035414.
- 88. Trifonov A. V. [и др.]. Multiple-frequency quantum beats of quantum confined exciton states // Phys. Rev. B. 2015. Нояб. Т. 92, № 20. С. 201301.
- Chemla D. S. [и др.]. Room Temperature Excitonic Nonlinear Absorption and Refraction in GaAs/AIGaAs Multiple Quantum Well Structures // IEEE J. Quantum Electron. — 1984. — Т. 20, № 3. — С. 265—275.
- 90. Miller D. A. B. [и др.]. Degenerate four-wave mixing in room-temperature GaAs/GaAlAs multiple quantum well structures // Appl. Phys. Lett. 1983. Июнь. Т. 42, № 11. С. 925—927.
- Lindberg M., Binder R., Koch S. W. Theory of the semiconductor photon echo // Phys. Rev. A. - 1992. - Φевр. - T. 45, № 3. - C. 1865-1875.
- 92. Yajima T., Taira Y. Spatial Optical Parametric Coupling of Picosecond Light Pulses and Transverse Relaxation Effect in Resonant Media // J. Phys. Soc. Japan. — 1979. — Нояб. — Т. 47, № 5. — С. 1620—1626.

- 93. Loring R. F., Mukamel S. Unified theory of photon echoes: The passage from inhomogeneous to homogeneous line broadening // Chem. Phys. Lett. – 1985. – Март. – Т. 114, № 4. – С. 426–429.
- Allen L., Eberly J. H. Optical Resonance and Two-Level Atoms. New York : John Wiley & Sons, inc, 1975.
- 95. Hahn E. L. Spin echoes // Phys. Rev. 1950. T. 80, № 4. C. 580-594.
- 96. Steel D. G., Cundiff S. T. Photon Echoes in Disordered Semiconductor Quantum Wells // Laser Phys. - 2002. - T. 12, № 8. - C. 1135-1147.
- 97. Hegarty J. [и др.]. Resonant degenerate four-wave mixing in GaAs multiquantum well structures // Appl. Phys. Lett. 1982. Янв. Т. 40, № 2. С. 132—134.
- Schultheis L., Sturge M. D., Hegarty J. Photon echoes from two-dimensional excitons in GaAs-AlGaAs quantum wells // Appl. Phys. Lett. — 1985. — Нояб. — Т. 47, № 9. — С. 995—997.
- 99. Schultheis L. [и др.]. Picosecond Phase Coherence and Orientational Relaxation of Excitons in GaAs // Phys. Rev. Lett. — 1986. — Окт. — Т. 57, № 14. — С. 1797—1800.
- 100. Schultheis L. [и др.]. Optical dephasing of homogeneously broadened twodimensional exciton transitions in GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. – 1986. — Дек. — Т. 34, № 12. — С. 9027—9030.
- 101. Poltavtsev S. V. [и др.]. Time-resolved photon echoes from donor-bound excitons in ZnO epitaxial layers // Phys. Rev. B. — 2017. — Июль. — Т. 96, № 3. — С. 035203.
- 102. Honold a. [и др.]. Collision broadening of two-dimensional excitons in a GaAs single quantum well // Phys. Rev. B. 1989. Сент. Т. 40, № 9. С. 6442—6445.
- 103. Koch M. [и др.]. Enhanced energy and phase relaxation of excitons in the presence of bare electrons // Phys. Rev. B. — 1995. — Май. — Т. 51, № 19. — C. 13887—13890.
- 104. Koch M. [и др.]. Subpicosecond photon-echo spectroscopy on GaAs/AlAs short-period superlattices // Phys. Rev. B. — 1993. — Янв. — Т. 47, № 3. — С. 1532—1539.

- 105. Brinkmann D. [и др.]. Trion and exciton dephasing measurements in modulation-doped quantum wells: A probe for trion and carrier localization // Phys. Rev. B. — 1999. — Авг. — Т. 60, № 7. — С. 4474—4477.
- 106. Feuerbacher B. [и др.]. Quantum beats between the light and heavy hole excitons in a quantum well // Solid State Commun. — 1990. — Июнь. — Т. 74, № 12. — С. 1279—1283.
- 107. Leo K. [и др.]. Subpicosecond four-wave mixing in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As quantum wells // Phys. Rev. B. 1991. Сент. Т. 44, № 11. С. 5726—5737.
- 108. Koch M. [и др.]. Quantum beats versus polarization interference: An experimental distinction // Phys. Rev. Lett. 1992. Дек. Т. 69, № 25. С. 3631—3634.
- 109. Chen X. [и др.]. Temporally and spectrally resolved amplitude and phase of coherent four-wave-mixing emission from GaAs quantum wells // Phys. Rev. В. 1997. Окт. Т. 56, № 15. С. 9738—9743.
- 110. Leo K. [и др.]. Coherent oscillations of a wave packet in a semiconductor double-quantum-well structure // Phys. Rev. Lett. — 1991. — Янв. — Т. 66, № 2. — С. 201—204.
- 111. Arimoto O. [и др.]. Ultrafast quantum beats and optical dephasing of exciton systems in β-ZnP2 by spectrally resolved four-wave mixing // J. Phys. Soc. Japan. — 2003. — Т. 72, № 8. — С. 1863—1866.
- 112. Mayer E. J. [и др.]. Evidence of biexcitonic contributions to four-wave mixing in GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. — 1994. — Т. 50, № 19. — С. 14730— 14733.
- 113. Mermillod Q. [и др.]. Dynamics of excitons in individual InAs quantum dots revealed in four-wave mixing spectroscopy // Optica. 2016. Т. 3, № 4. С. 377.
- 114. Cundiff S. T. [и др.]. Optical coherence in semiconductors: strong emission mediated by nondegenerate interactions // Phys. Rev. Lett. 1996. Авг. Т. 77, № 6. С. 1107—1110.

- 115. *Poltavtsev S. V.* [и др.]. Damping of Rabi oscillations in intensity-dependent photon echoes from exciton complexes in a CdTe/(Cd,Mg)Te single quantum well // Phys. Rev. B. 2017. Т. 96, № 7. С. 1—7.
- 116. Kosarev A. N. [и др.]. Accurate photon echo timing by optical freezing of exciton dephasing and rephasing in quantum dots // Commun. Phys. — 2020. — Дек. — Т. 3, № 1. — С. 228.
- 117. Gallart M. [и др.]. Determining the nature of excitonic dephasing in highquality GaN/AlGaN quantum wells through time-resolved and spectrally resolved four-wave mixing spectroscopy // Phys. Rev. B. — 2017. — Июль. — T. 96, № 4. — C. 41303.
- 118. Jakubczyk T. [и др.]. Radiatively Limited Dephasing and Exciton Dynamics in MoSe<sub>2</sub> Monolayers Revealed with Four-Wave Mixing Microscopy // Nano Lett. — 2016. — Сент. — Т. 16, № 9. — С. 5333—5339.
- 119. You J. [и др.]. Nonlinear optical properties and applications of 2D materials: theoretical and experimental aspects // Nanophotonics. — 2018. — Дек. — T. 8, № 1. — С. 63—97.
- 120. Martin E. W. [и др.]. Encapsulation Narrows and Preserves the Excitonic Homogeneous Linewidth of Exfoliated Monolayer MoSe<sub>2</sub> // Phys. Rev. Appl. - 2020. - Авг. - Т. 14, № 2. - С. 021002.
- 121. Becker M. A. [и др.]. Long Exciton Dephasing Time and Coherent Phonon Coupling in CsPbBr<sub>2</sub>Cl Perovskite Nanocrystals // Nano Lett. — 2018. — Т. 18, № 12. — С. 7546—7551.
- 122. Trifonov A. V. [и др.]. Photon Echo Polarimetry of Excitons and Biexcitons in a CH<sub>3</sub> NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub> Perovskite Single Crystal // ACS Photonics. 2022. Февр. Т. 9, № 2. С. 621—629.
- 123. Nazarov R. S. [и др.]. Photon echo from free excitons in a CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub> halide perovskite single crystal // Phys. Rev. B. 2022. Июнь. Т. 105, № 24. С. 245202.
- 124. Salewski M. [и др.]. Photon echoes from (In,Ga)As quantum dots embedded in a Tamm-plasmon microcavity // Phys. Rev. B. — 2017. — Т. 95, № 3. — C. 35312.

- 125. Poltavtsev S. V. [и др.]. Photon echo transients from an inhomogeneous ensemble of semiconductor quantum dots // Phys. Rev. B. — 2016. — Т. 93, № 12. — С. 1—4.
- 126. Wigger D. [и др.]. Exploring coherence of individual excitons in InAs quantum dots embedded in natural photonic defects: Influence of the excitation intensity // Phys. Rev. B. 2017. Т. 96, № 16. С. 1-12.
- 127. Langer L. [и др.]. Magnetic-Field Control of Photon Echo from the Electron-Trion System in a CdTe Quantum Well: Shuffling Coherence between Optically Accessible and Inaccessible States // Phys. Rev. Lett. — 2012. — Окт. — Т. 109, № 15. — С. 157403.
- 128. Langer L. [и др.]. Access to long-term optical memories using photon echoes retrieved from semiconductor spins // Nat. Photonics. 2014. Нояб. Т. 8, № 11. С. 851—857.
- 129. Poltavtsev S. V. [и др.]. Quantum beats in the polarization of the spindependent photon echo from donor-bound excitons in CdTe/(Cd,Mg)Te quantum wells // Phys. Rev. B. — 2020. — Февр. — Т. 101, № 8. — С. 081409.
- 130. Poltavtsev S. V. [и др.]. In-plane anisotropy of the hole g factor in CdTe/(Cd,Mg)Te quantum wells studied by spin-dependent photon echoes // Phys. Rev. Res. 2020. T. 2, № 2. C. 1-14.
- 131. Trifonov A. V. [и др.]. Homogeneous optical anisotropy in an ensemble of InGaAs quantum dots induced by strong enhancement of the heavy-hole band Landé parameter q // Phys. Rev. B. — 2021. — Окт. — Т. 104, № 16. — C. L161405.
- 132. Kosarev A. N. [и др.]. Microscopic dynamics of electron hopping in a semiconductor quantum well probed by spin-dependent photon echoes // Phys. Rev. B. - 2019. - Сент. - Т. 100, № 12. - С. 121401.
- 133. Smallwood C. L., Cundiff S. T. Multidimensional Coherent Spectroscopy of Semiconductors // Laser Photon. Rev. — 2018. — Дек. — Т. 12, № 12. — С. 1800171.
- 134. Salewski M. [и др.]. High-Resolution Two-Dimensional Optical Spectroscopy of Electron Spins // Phys. Rev. X. 2017. Авг. Т. 7, № 3. С. 031030.

- 135. Poltavtsev S. V. [и др.]. Polarimetry of photon echo on charged and neutral excitons in semiconductor quantum wells // Sci. Rep. — 2019. — Дек. — Т. 9, № 1. — С. 5666.
- 136. Babenko I. [и др.]. Studies of photon echo from exciton ensemble in (In,Ga)As quantum dots // J. Phys. Conf. Ser. 2018. Янв. Т. 951, № 1. С. 012029.
- 137. Meier T., Thomas P., Koch S. W. Coherent semiconductor optics. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2007. — C. 1—319.
- 138. Yanibekov I. I. [и др.]. Difference in the behavior of the photon echo of excitons in InGaAs/GaAs quantum wells from the predictions of the model of two-level system ensemble // J. Phys. Conf. Ser. — 2020. — Март. — Т. 1482, № 1. — C. 012020.
- 139. Spin Physics in Semiconductors. Т. 157 / под ред. М. I. Dyakonov. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2008. — (Springer Series in Solid-State Sciences).
- 140. Klingshirn C. ZnO: From basics towards applications // Phys. status solidi. 2007. Сент. Т. 244, № 9. С. 3027—3073.
- 141. *Rodina A. V.* [идр.]. Free excitons in wurtzite GaN // Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys. — 2001. — Т. 64, № 11. — С. 1152041—11520419.
- 142. Meyer B. K. [и др.]. Bound exciton and donor-acceptor pair recombinations in ZnO // Phys. Stat. Sol. — 2004. — T. 241, № 2. — C. 231—260.
- 143. Kesteren H. W. van [и др.]. Fine structure of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells // Phys. Rev. B. — 1990. — Март. — Т. 41, № 8. — С. 5283— 5292.
- 144. Solovev I. A. [и др.]. Separation of inhomogeneous and homogeneous broadening manifestations in InGaAs/GaAs quantum wells by time-resolved four-wave mixing // J. Phys. Conf. Ser. 2018. Т. 1124, № 5.
- 145. Kalusniak S. [и др.]. Vertical cavity surface emitting laser action of an all monolithic ZnO-based microcavity // Appl. Phys. Lett. 2011. Янв. Т. 98, № 1. С. 011101.

- 146. *Tsukazaki A.* [и др.]. Repeated temperature modulation epitaxy for p-type doping and light-emitting diode based on ZnO // Nat. Mater. 2004. Дек. Т. 4, № 1. С. 42—46.
- 147. Yip H.-L. [и др.]. Polymer Solar Cells That Use Self-Assembled-Monolayer-Modified ZnO/Metals as Cathodes // Adv. Mater. — 2008. — Июнь. — Т. 20, № 12. — С. 2376—2382.
- 148. Djurišić A., Ng A., Chen X. ZnO nanostructures for optoelectronics: Material properties and device applications // Prog. Quantum Electron. — 2010. — Июль. — Т. 34, № 4. — С. 191—259.
- 149. Morhain C. [и др.]. Internal electric field in wurtzite ZnO/Zn<sub>0.78</sub>Mg<sub>0.22</sub>O // Phys. Rev. B. — 2005. — Дек. — Т. 72, № 24. — С. 241305.
- 150. Bretagnon T. [и др.]. Barrier composition dependence of the internal electric field in ZnO/Zn<sub>1-x</sub>MgxO quantum wells // Appl. Phys. Lett. — 2007. — Май. — Т. 90, № 20. — С. 201912.
- 151. *Makino T.* [и др.]. Magneto-optical study of ZnO/Mg<sub>x</sub>Zn<sub>1-x</sub>O // Phys. Rev. B. — 2009. — Окт. — Т. 80, № 15. — С. 155333.
- 152. Mallet E. [и др.]. Accurate determination of homogeneous and inhomogeneous excitonic broadening in ZnO by linear and nonlinear spectroscopies // Phys. Rev. B. 2013. Апр. Т. 87, № 16. С. 161202.
- 153. Davis J. A. [и др.]. Observation of coherent biexcitons in ZnO/ZnMgO multiple quantum wells at room temperature // Appl. Phys. Lett. — 2006. — Окт. — Т. 89, № 18. — С. 182109.
- 154. Solovev I. A. [и др.]. Coherent dynamics of localized excitons and trions in ZnO/(Zn,Mg)O quantum wells studied by photon echoes // Phys. Rev. B. – 2018. — Июнь. — Т. 97, № 24. — С. 245406.
- 155. *Liu H. Y.* [и др.]. Donor behavior of Sb in ZnO // J. Appl. Phys. 2012. Авг. Т. 112, № 3. С. 033706.
- 156. Takagahara T. Excitonic relaxation processes in quantum well structures // J. Lumin. - 1989. - T. 44, № 4-6. - C. 347-366.
- 157. Cundiff S. T., Wang H., Steel D. G. Polarization-dependent picosecond excitonic nonlinearities and the complexities of disorder // Phys. Rev. B. – 1992. – T. 46, № 11. – C. 7248–7251.

- 158. Hellmann R. [и др.]. Dephasing of localized and delocalized excitons in disordered CdTe/(Cd,Mg)Te multiple quantum wells // Mater. Sci. Forum. 1995. Т. 182—184. С. 199—202.
- 159. Moody G. [и др.]. Intrinsic homogeneous linewidth and broadening mechanisms of excitons in monolayer transition metal dichalcogenides // Nat. Commun. - 2015. - T. 6, May. - C. 1-6.
- 160. Esser A., Yayon Y., Bar-Joseph I. Localization Properties of Trions // Phys. status solidi. 2002. Нояб. Т. 234, № 1. С. 266—272.
- 161. Zimmermann R., Große F., Runge E. Excitons in semiconductor nanostructures with disorder // Pure Appl. Chem. 1997. Янв. Т. 69, № 6. С. 1179—1186.
- 162. Noll G. [и др.]. Picosecond stimulated photon echo due to intrinsic excitations in semiconductor mixed crystals // Phys. Rev. Lett. 1990. Февр. Т. 64, № 7. С. 792—795.
- 163. Poltavtsev S. V. [и др.]. Long coherent dynamics of localized excitons in (In,Ga)N/GaN quantum wells // Phys. Rev. B. — 2018. — Т. 98, № 19. — С. 195315.
- 164. Narukawa Y. [и др.]. Role of self-formed InGaN quantum dots for exciton localization in the purple laser diode emitting at 420 nm // Appl. Phys. Lett. — 1997. — Т. 70, № 8. — С. 981.
- 165. Chichibu S. [и др.]. Spontaneous emission of localized excitons in InGaN single and multiquantum well structures // Appl. Phys. Lett. — 1996. — Т. 69, № 27. — С. 4188.
- 166. Chichibu S., Wada K., Nakamura S. Spatially resolved cathodoluminescence spectra of InGaN quantum wells // Appl. Phys. Lett. — 1997. — T. 71, № 16. — C. 2346.
- 167. Singh R. [и др.]. Phase separation in InGaN thick films and formation of InGaN/GaN double heterostructures in the entire alloy composition // Appl. Phys. Lett. — 1997. — Т. 70, № 9. — С. 1089.
- 168. Musikhin Y. G. [и др.]. Influence of metalorganic chemical vapor deposition growth conditions on In-rich nanoislands formation in InGaN/GaN structures // Appl. Phys. Lett. — 2002. — Т. 80, № 12. — С. 2099.

- 169. Bolshakov A. S. [и др.]. Resonant Bragg structures based on III-nitrides // J. Mater. Res. 2015. Т. 30, № 5. С. 603.
- 170. Tsatsulnikov A. F. [и др.]. Influence of hydrogen on local phase separation in InGaN thin layers and properties of light-emitting structures based on them // Semiconductors. — 2011. — Февр. — Т. 45, № 2. — С. 271—276.
- 171. Oliver R. A. [и др.]. InGaN quantum dots grown by metalorganic vapor phase epitaxy employing a post-growth nitrogen anneal // Appl. Phys. Lett. 2003. Июль. Т. 83, № 4. С. 755—757.
- 172. *Choi S.-K.* [и др.]. Fabrication and characterization of self-assembled InGaN quantum dots by periodic interrupted growth // / под ред. М. Razeghi, G. J. Brown. 02.2007. 64791F.
- 173. Zimmermann R. [и др.]. Transient four-wave-mixing spectroscopy on gallium nitride: Energy splittings of intrinsic excitonic resonances // Phys. Rev. B. 1997. T. 56, № 20. R12722—R12724.
- 174. Ishiguro T. [и др.]. Coherent manipulation of A and B excitons in GaN // Phys. Status Solidi C. — 2007. — T. 4, № 7. — C. 2776—2779.
- 175. Schneck J. R. [и др.]. Temperature dependent photon echoes of a GaN thin film // Appl. Phys. Lett. 2012. Т. 101, № 14. С. 142102.
- 176. *Haag H.* [и др.]. Optical nonlinearities of gallium nitride // J. Mater. Sci. Eng. В. 1997. Т. 50, № 1—3. С. 197—200.
- 177. Kundys D. O. [и др.]. Resolution of discrete excited states in In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N multiple quantum wells using degenerate four-wave mixing // Phys. Rev. B. 2006. Апр. Т. 73, № 16. С. 165309.
- 178. Bolshakov A. S. [и др.]. Room temperature exciton-polariton resonant reflection and suppressed absorption in periodic systems of InGaN quantum wells // J. Appl. Phys. 2017. Т. 121, № 13. С. 133101.
- 179. Azuhata T. [и др.]. Optical phonons in GaN // Phys. B Condens. Matter. 1996. Т. 219/220. С. 493.
- 180. Borri P. [и др.]. Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots: Dependence on quantum confinement // Phys. Rev. B. 2005. Т. 71, № 11. С. 115328.

- 181. *Kim M.* [и др.]. Investigating carrier localization and transfer in InGaN/GaN quantum wells with V-pits using near-field scanning optical microscopy and correlation analysis // Sci. Rep. 2017. Т. 7. С. 42221.
- 182. Hahn W. [и др.]. Evidence of nanoscale Anderson localization induced by intrinsic compositional disorder in InGaN/GaN quantum wells by scanning tunneling luminescence spectroscopy // Phys. Rev. B. — 2018. — Июль. — T. 98, № 4. — C. 45305.
- 183. *Chichibu S. F.* [и др.]. Optical properties of InGaN quantum wells // Mater. Sci. Eng., B. 1999. Т. 59, № 1—3. С. 298—306.
- 184. Ivchenko E. L., Nesvizhskii A. I., Jorda S. Resonant Bragg reflection from quantum-well structures // Superlattices Microstruct. — 1994. — T. 16, № 1. — C. 17—20.
- 185. Hübner M. [и др.]. Collective Effects of Excitons in Multiple-Quantum-Well Bragg and Anti-Bragg Structures // Phys. Rev. Lett. — 1996. — Май. — Т. 76, № 22. — С. 4199—4202.
- 186. Bayer M., Forchel A. Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in In<sub>0.60</sub>Ga<sub>0.40</sub>As/GaAs self-assembled quantum dots // Phys. Rev. B. 2002. T. 65, № 4. C. 41308.
- 187. Schömig H. [и др.]. Probing Individual Localization Centers in an InGaN/GaN Quantum Well // Phys. Rev. Lett. 2004. Т. 92, № 10. С. 106802.
- 188. Gotoh H. [и др.]. Effects of nonradiative centers on localized excitons in InGaN quantum well structures // Appl. Phys. Lett. 2006. Т. 89, № 22. С. 222110.
- 189. Poltavtsev S. [и др.]. Extremely low inhomogeneous broadening of exciton lines in shallow (In,Ga)As/GaAs quantum wells // Solid State Commun. — 2014. — Т. 199. — С. 47—51.
- 190. Solovev I. A. [и др.]. Long-lived dark coherence brought to light by magnetic-field controlled photon echo // Phys. Rev. B. 2021. Июнь. Т. 103, № 23. С. 235312.
- 191. Solovev I. A. [и др.]. Manipulation of optical coherence of quantum-well excitons by transverse magnetic field // Phys. Rev. B. — 2022. — Сент. — T. 106, № 11. — С. 115401.

- 192. Lu Z. [и др.]. Magnetic field mixing and splitting of bright and dark excitons in monolayer MoSe<sub>2</sub> // 2D Mater. 2020. Т. 7, № 1.
- 193. Zhang X. X. [и др.]. Magnetic brightening and control of dark excitons in monolayer WSe<sub>2</sub> // Nat. Nanotechnol. 2017. Т. 12, № 9. С. 883—888.
- 194. Zhou Y. [и др.]. Probing dark excitons in atomically thin semiconductors via near-field coupling to surface plasmon polaritons // Nat. Nanotechnol. — 2017. — T. 12, № 9. — C. 856—860.
- 195. *Glasberg S.* [и др.]. Exciton exchange splitting in wide GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. 1999. Дек. Т. 60, № 24. R16295—R16298.
- 196. Bayer M. [и др.]. Spectroscopic study of dark excitons in In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As selfassembled quantum dots by a magnetic-field-induced symmetry breaking // Phys. Rev. B. — 2000. — Март. — Т. 61, № 11. — С. 7273—7276.
- 197. Zaric S. Optical Signatures of the Aharonov-Bohm Phase in Single-Walled Carbon Nanotubes // Science (80-.). — 2004. — Май. — Т. 304, № 5674. — С. 1129—1131.
- 198. *Poem E.* [и др.]. Accessing the dark exciton with light // Nat. Phys. 2010. Дек. Т. 6, № 12. С. 993—997.
- 199. Schwartz I. [и др.]. Deterministic Writing and Control of the Dark Exciton Spin Using Single Short Optical Pulses // Phys. Rev. X. — 2015. — Янв. — T. 5, № 1. — С. 011009.
- 200. *Ikeuchi O.* [и др.]. Observation of population transfer to dark exciton states by using spin-diffracted four-wave mixing // J. Appl. Phys. 2003. Июнь. Т. 93, № 12. С. 9634—9638.
- 201. Accanto N. [и др.]. Engineering the spin-flip limited exciton dephasing in colloidal CdSe/CdS quantum dots // ACS Nano. 2012. Т. 6, № 6. С. 5227—5233.
- 202. Siegner U. [и др.]. Quantum interference in the system of Lorentzian and Fano magnetoexciton resonances in GaAs // Phys. Rev. B. 1995. Февр. Т. 51, № 8. С. 4953—4961.
- 203. Cundiff S. T. [и др.]. Excitonic dephasing in semimagnetic semiconductors // J. Opt. Soc. Am. B. — 1996. — Т. 13, № 6. — С. 1263.

- 204. Ivchenko E. [и др.]. Exciton longitudinal-transverse splitting in GaAs/AlGaAs superlattices and multiple quantum wells // Solid State Commun. 1989. Май. Т. 70, № 5. С. 529—534.
- 205. *Miller R. C.* [и др.]. Biexcitons in GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. 1982. Т. 25, № 10. С. 6545—6547.
- 206. Sobiesierski Z. [и др.]. Photoluminescence and photoluminescence excitation spectroscopy of H-related defects in strained In<sub>x</sub>Ga<sub>1<sup>×</sup>x</sub>As/GaAs (100) quantum wells // J. Vac. Sci. Technol. B Microelectron. Nanom. Struct. 1992. T. 10, № 4. C. 1975.
- 207. Borri P. [и др.]. Binding energy and dephasing of biexcitons in In<sub>0.18</sub>Ga<sub>0.82</sub>As/GaAs single quantum wells // Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. — 1999. — T. 60, № 7. — C. 4505—4508.
- 208. *Feldmann J.* [и др.]. Coherent dynamics of excitonic wave packets // Phys. Rev. Lett. — 1993. — Т. 70, № 20. — С. 3027—3030.
- 209. *Ikezawa M.* [и др.]. Photon echo study of excitons and excitonic complexes in self-assembled quantum dots // J. Lumin. 2007. Т. 122/123, № 1/2. С. 730—734.
- 210. Glazov M. M. Electron & Nuclear Spin Dynamics in Semiconductor Nanostructures. T. 1. — Oxford : Oxford University Press, 2018.
- 211. Bir G. L., Pikus G. E. Symmetry and strain-induced effects in semiconductors. — New York : Wiley, 1974.
- 212. Kesteren H. W. van [и др.]. Optically Detected Magnetic Resonance Study of a Type-II GaAs-AlAs Multiple Quantum Well // Phys. Rev. Lett. 1988. Июль. Т. 61, № 1. С. 129—132.
- 213. Madelung O., Osten W. von der, Rössler U. Intrinsic Properties of Group IV Elements and III-V, II-VI and I-VII Compounds / под ред. О. Madelung. — Berlin, Heidelberg : Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1987.
- 214. Heberle A. P., Rühle W. W., Ploog K. Quantum beats of electron Larmor precession in GaAs wells // Phys. Rev. Lett. — 1994. — Июнь. — Т. 72, № 24. — С. 3887—3890.

- 215. *Malinowski A.* [и др.]. Larmor beats and conduction electron g factors in In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. 1999. Сент. Т. 60, № 11. С. 7728—7731.
- 216. Malinowski A., Harley R. Anisotropy of the electron g factor in latticematched and strained-layer III-V quantum wells // Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. - 2000. - T. 62, № 3. - C. 2051-2056.
- 217. Kusrayev Y. G. [и др.]. Homogeneous optical anisotropy in an ensemble of InGaAs quantum dots induced by strong enhancement of the heavy-hole band Landé parameter q // Phys. Rev. Lett. 1999. Апр. Т. 82, № 15. С. 3176—3179.
- 218. Semenov Y. G., Ryabchenko S. M. Effects of photoluminescence polarization in semiconductor quantum wells subjected to an in-plane magnetic field // Phys. Rev. B. — 2003. — Июль. — Т. 68, № 4. — С. 045322.
- 219. *Marie X.* [и др.]. Hole spin quantum beats in quantum-well structures // Phys. Rev. B. 1999. Авг. Т. 60, № 8. С. 5811-5817.
- 220. Tholen H. M. [и др.]. Active tuning of the g-tensor in InGaAs/GaAs quantum dots via strain // Phys. Rev. B. 2019. Т. 99, № 19. С. 1—8.
- 221. Wu S. [и др.]. Electron and Hole g Tensors of Neutral and Charged Excitons in Single Quantum Dots by High-Resolution Photocurrent Spectroscopy // Phys. Rev. Appl. 2020. Июль. Т. 14, № 1. С. 014049.
- 222. Zhukov E. A. [и др.]. Magnetic field dependence of the in-plane hole g factor in ZnSe- and CdTe-based quantum wells // Phys. Rev. B. — 2021. — Март. — T. 103, № 12. — С. 125305.
- 223. Yugova I. A. [и др.]. Exciton fine structure in InGaAs/GaAs quantum dots revisited by pump-probe Faraday rotation // Phys. Rev. B. 2007. Май. Т. 75, № 19. С. 195325.
- 224. *Блум К.* Теория матрицы плотности и ее приложения / под ред. Зубарев Д. Н. Москва : Мир, 1983.
- 225. Landau L. D., Lifshitz E. M. Quantum Mechanics. 3rd. Pergamon, 1977.