

*Laserowanie z pojedynczych i sprzężonych
podwójnych mikrownek polarytonowych
wykonanych z tellurków i selenków*



KRZYSZTOF SAWICKI

ROZPRAWA DOKTORSKA PRZYGOTOWANA POD OPIEKĄ
DR. HAB. JANA SUFFCZYŃSKIEGO

UNIwersytet Warszawski
Warszawa, 2021

Laserowanie z pojedynczych i sprzężonych podwójnych mikrownęk polarytonowych wykonanych z tellurków i selenków

STRESZCZENIE

Laserowanie polega na nieliniowym wzmocnieniu światła w ośrodku aktywnym umieszczonym we wnętrzu rezonansowej. Zadania realizowane w ramach pracy doktorskiej skupiają się na efektach laserowania z półprzewodnikowych mikrownęk polarytonowych wykonanych ze związków II-VI układu okresowego. Silne sprzężenie fotonu i pary elektron-dziura prowadzi do powstania kwazicząstki o podwójnej naturze, zwanej polarytonem ekscytonowym. Mikrownęki z materiałów półprzewodnikowych z grup II-VI pozostają zdecydowanie mniej zbadane w porównaniu do ich odpowiedników z grup III-V. Ze względu na większą siłę oscylatora ekscytonu w związkach półprzewodnikowych II-VI ich użycie jako materiału aktywnego otwiera szereg nowych możliwości dla zastosowań w optoelektronice.

W ogólności można zaobserwować trzy reżimy laserowania w emisji z układu studni kwantowej sprzężonej z półprzewodnikową mikrownęką optyczną. Laserowanie polarytonowe w silnym sprzężeniu światła z materią powstaje w wyniku stymulowanego rozpraszania mikrownękowych polarytonów ekscytonowych do stanu podstawowego. W wyższych gęstościach mocy pobudzania, gdy w związku z efektami dekoherencji zostaje utracone silne sprzężenie, możliwe jest uzyskanie laserowania fotonowego, za które odpowiadać mogą dwa mechanizmy: stymulowana rekombinacja ekscytonów lub, w granicznym przypadku dużych mocy pobudzania, stymulowana rekombinacja plazmy elektronowo-dziurowej. Jak dotąd, niezależnie od wybranych materiałów, co najwyżej jeden lub dwa z wymienionych reżimów obserwowane były dla jednej struktury. Dzięki odpowiedniemu doborowi materiałów i przemyślanemu zaprojektowaniu struktury mikrownęki badania prowadzone w ramach pracy doktorskiej wykazały obecność wszystkich trzech reżimów laserowania dla jednej struktury. Potwierdzono je przez obserwację trzech progów laserowania w emisji z pułapek fotonicznych w mikrownęce optycznej na bazie selenków i tellurków z pojedynczą studnią kwantową $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$. Pozwoliło to na ustalenie niewyznaczonej wcześniej relacji między trzema różnymi reżimami laserowania.

Badania laserowania polarytonowego rozszerzono również na układ dwóch sprzężonych półprzewodnikowych mikrownęk optycznych ze studniami kwantowymi na bazie związków telluru. Sprzężenie światło-materia w układzie tego typu prowadzi do powstania czteropoziomowego systemu polarytonowego. Zaobserwowano w nim kondensację Bosego-Einsteina i laserowanie polarytonowe z dwóch najniższych gałęzi polarytonowych. Pomiary spektroskopowe z rozdzielczością czasową wykazały złożoną dynamikę procesów

odpowiadających za transfer wzbudzenia między rezerwuarem nośników wykreowanych światłem i poziomami polarytonowymi. W szczególności pokazano, że kondensaty polarytonowe, z których następuje emisja, nie koegzystują w czasie. Budowanie populacji kondensatu na wyższej gałęzi polarytonowej następuje po radiacyjnym zaniku kondensatu, który został wytworzony na gałęzi niższej. Co więcej, obecności kondensatu na wyższej gałęzi polarytonowej towarzyszy zjawisko zdegenerowanego w energii parametrycznego rozpraszania polarytonów ekscytonowych do niższej energetycznej gałęzi polarytonowej. Systematyczne pomiary przeprowadzone dla podwójnej mikrownęki i modelowanie teoretyczne pozwoliły zrozumieć i opisać mechanizm odpowiedzialny za dynamikę kondensatu w tym wielopoziomowym systemie polarytonowym.

Realizacja zadań prezentowanych w niniejszej pracy jest istotna z punktu widzenia przydatności materiałów grupy II-VI w badaniach wpływu mikrostrukturalizacji na lokalizację i laserowanie z mikrownęk półprzewodnikowych oraz w zastosowaniach praktycznych, np. do budowy urządzeń polarytronicznych.

Lasing from a single and coupled double polariton microcavities made of tellurides and selenides

ABSTRACT

Lasing relies on the non-linear amplification of light in the active medium of an optical resonator. The tasks carried out as part of the doctoral dissertation focus on the effects of lasing from semiconductor polariton microcavities made of II-VI compounds of the periodic table of elements. The strong coupling of the photon and the electron-hole pair leads to the formation of a double-nature quasiparticle, called the exciton-polariton. The semiconductor microcavities based on materials from the II-VI groups remain much less explored compared to their counterparts from the III-V groups. Due to the greater strength of the exciton oscillator II-VI in semiconductor compounds, their use as an active material opens up a number of new possibilities for optoelectronics applications.

In general, we can observe three laser regimes in the emission from a quantum well coupled to a semiconductor optical microcavity. Polariton lasing in a strong light-matter coupling regime results from the stimulated scattering of exciton-polaritons to the ground state. In the case of higher excitation power, when the strong coupling is lost due to decoherence effects, it is possible to obtain photon lasing for which two mechanisms may be responsible: stimulated exciton recombination or, in the extreme case of a high density of excitation power, stimulated electron recombination of electron-hole plasma. So far, regardless of the selected materials, at most, one or two of the listed regimes have been observed for one structure. Thanks to the appropriate selection of materials and thoughtful design of the microcavity structure, the research carried out as part of the doctoral dissertation showed the presence of all three laser regimes for one structure. It was confirmed by observing the three laser thresholds in the emission from photonic traps in an optical microcavity based on selenides and tellurides with a single quantum CdSe/(Cd,Mg)Se well. This allowed establishing a previously undetermined relationship between three different laser regimes.

Polariton lasing study has also been extended to a system of two coupled

semiconductor optical microcavities with quantum wells based on tellurium compounds. Light-matter coupling in this type of system leads to a four-level polariton system. Bose-Einstein condensation and polariton lasing from the two lowest polariton branches were observed. Spectroscopic measurements with temporal resolution revealed the complex dynamics of the processes responsible for the excitation transfer between the reservoir of light-created carriers and the polariton levels. In particular, it has been shown that the emitting polariton condensates do not coexist in time. The construction of the condensate population on the upper polariton branch follows the radiation decay of condensate that has been produced on the lower branch. Moreover, the presence of condensate on the higher polariton branch is accompanied by the energy-degenerate scattering of exciton-polaritons into the lower energetic polariton branch. Systematic measurements for the double microcavity and theoretical modelling made it possible to understand and describe the mechanism responsible for the condensate dynamics in this multi-level polariton system.

The implementation of the tasks presented in this thesis is essential from the point of view of the usefulness of the materials of the II-VI group in the study of the influence of microstructure on the location and lasing from semiconductor microcavities and in practical applications, e.g. for the construction of polaritronic devices.

Spis treści

0.1	Cel pracy	5
0.2	Układ pracy	5
1	WPROWADZENIE DO POLARYTONOWYCH SYSTEMÓW MIKROWNĘKOWYCH	7
1.1	Ekscytyony w półprzewodnikach	8
1.2	Silne sprzężenie światło-materia w mikrownęce optycznej z emiterem	24
1.3	Efekty laserowania z mikrownęk półprzewodnikowych	31
1.4	Kondensacja Bosego-Einsteina polarytonów i laserowanie polarytonowe	32
1.5	Procesy parametryczne polarytonów ekscytonowych	40
2	BADANE STRUKTURY - PRODUKCJA I MIKROSTRUKTURYZACJA	43
2.1	Mikrownęki na bazie materiałów II-VI	44
2.2	Wzrost epitaksjalny półprzewodnikowych mikrownęk optycznych	45
2.3	Badane próbki	49
2.4	Mikrostrukturyzacja próbek mikrownękowych za pomocą skupionej wiązki jonów galowych	56
3	UKŁADY POMIAROWE ORAZ ZASTOSOWANE TECHNIKI SPEKTROSKOPOWE	59

3.1	Pomiary niskotemperaturowe i wysokotemperaturowe	60
3.2	Monochromator oraz kamera z matrycą CCD	63
3.3	Podgląd powierzchni próbki	67
3.4	Metoda wyznaczania energii górnej gałęzi polarytonowej	68
4	EFEKTY LASEROWANIA Z MIKROWNĘKI ZAWIERAJĄCEJ POJEDYNCZĄ STUDNIĘ KWANTOWĄ $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$	75
4.1	Motywacja podjętych badań	76
4.2	Charakteryzacja badanego systemu	77
4.3	Trzy progi laserowania z pułapek fotonicznych	80
4.4	Gęstość mocy prowadząca do dysocjacji ekscytonu.	85
4.5	Laserowanie fotonowe z plazmy elektronowo-dziurowej w temperaturze pokojowej	87
4.6	Oszacowanie efektywnego rozmiaru pułapki fotonicznej za pomocą referencyjnych mikrofilarów	95
4.7	Laserowanie polarytonowe z supersieci $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$ w mikrownęce optycznej	96
4.8	Podsumowanie	100
5	REŻIM NIELINIOWY W UKŁADZIE DWÓCH SPRZĘŻONYCH MIKROWNĘK OPTYCZNYCH ZE STUDNIAMI KWANTOWYMI $(\text{Cd,Zn})\text{Te}/(\text{Cd,Zn,Mg})\text{Te}$	103
5.1	Motywacja prowadzonych badań	104
5.2	Model teoretyczny opisujący energię gałęzi polarytonowych w wielopoziomowym układzie mikrownękowym	106
5.3	Dynamika laserowania polarytonowego w układzie sprzężonych mikrownęk . . .	116
5.4	Model teoretyczny opisujący dynamikę polarytonów	117

5.5	Rozpraszanie parametryczne polarytonów zdegenerowane w energii	122
5.6	Podsumowanie	125
6	PODSUMOWANIE I PERSPEKTYWY NA PRZYSZŁOŚĆ	129
	BIBLIOGRAFIA	150

LE SAVANT N'ÉtudIE PAS LA NATURE PARCE QUE CELA EST UTILE,
IL L'ÉtudIE PARCE QU'IL Y PREND PLAISIR,
ET IL Y PREND PLAISIR PARCE QU'ELLE EST BELLE.

— *Henri Poincaré*

PAMIĘCI PROF. DR. HAB. MICHAŁA NAWROCKIEGO

Podziękowania

Kilka lat realizacji założeń pracy doktorskiej dały mi szansę spotkania osób, które wzbogaciły moją wiedzę naukową poprzez owocne dyskusje, przydatne wskazówki oraz konstruktywną krytykę. Pozwoliło mi to poszerzyć horyzonty i wzbudziło ciekawość badawczą, co przełożyło się na zrozumienie wielu aspektów naukowych, jak również zagadnień życia codziennego. Z tej bezcennej wiedzy korzystam do dziś. Osobom, które miały największy wkład chciałbym w tym miejscu szczególnie podziękować.

Przez pierwsze lata studiów doktoranckich opiekę nad moją pracą naukową sprawował ś.p. prof. dr hab. Michał Nawrocki. Był on dla mnie źródłem inspiracji i motywacji, jak również nauczycielem bezkompromisowej uczciwości badawczej. Jego kreatywność i zaangażowanie w pracę badawczą są dla mnie wzorem do naśladowania, a inspirujące anegdoty, które opowiadał przy każdym spotkaniu, będą z pewnością towarzyszyły mi w dalszej pracy naukowej.

Pragnę wyrazić wdzięczność mojemu promotorowi, dr. hab. Janowi Suffczyńskiemu za opiekę nad moimi pracami od początku mojej drogi naukowej oraz wprowadzenie w zagadnienia związane z pracą laboratoryjną. Dziękuję za poświęcony mi czas i cenne uwagi, bez których osiągnięcie wyników prezentowanych w naszych artykułach naukowych oraz w szczególności w tej pracy nie byłoby możliwe.

Chciałbym podziękować prof. dr hab. Andrzejowi Golnikowi, kierownikowi Zakładu Fizyki Ciała Stałego i grupy związanej z Laboratorium Ultraszybkąj Magnetospektroskopii za możliwość wykonania pracy. Szczególne podziękowania należą się dr. Jean-Guy Rousset za wprowadzenie do eksperymentów związanych z mikrownękowymi polarytonami

ekscytonowymi oraz wykonanie wstępnych badań laserowania polarytonowego w badanych przez nas próbkach, jak również za przyjacielskie rady i dyskusje. Dziękuję grupie związanej z laboratorium epitaksji z wiązek molekularnych, w szczególności Magdalenie Jurczak, Rafałowi Rudniewskiemu, dr. Maciejowi Ścieśkowi oraz kierownikowi laboratorium MBE dr. hab. Wojciechowi Pacuskiemu za wyprodukowanie próbek użytych do badań prezentowanych w niniejszej pracy. Dziękuję Kamilowi Sobczakowi oraz ś.p. dr. hab. Jolancie Borysiuk za wysokiej jakości zdjęcia mikroskopowe TEM i spektroskopowe EDX, które pozwoliły na głębsze zrozumienie emisji z pułapek fotonicznych w strukturze mikrownkowej. Serdecznie dziękuję dr. Thomasowi Sturgesowi za pomoc w opracowaniu modelu teoretycznego opisującego dynamikę emisji z układu sprzężonych mikrownek. Na każdym etapie powstawania niniejszej pracy dr. Tomasz Kazimierzczuk wykazał nieocenioną pomoc w realizacji technicznej strony eksperymentów.

Dziękuję byłym oraz obecnym pracownikom naukowym, doktorantom i studentom, z którymi miałem okazję pracować, jak również pracownikom technicznym oraz administracyjnym. Dr. Krzysztofowi Gałkowskiemu i dr. Maciejowi Ścieśkowi chciałbym podziękować za kilka lat współpracy podczas prowadzenia warsztatów naukowych z cyklu *Letnia Szkoła Fizyki* popularyzujących fizykę wśród młodzieży. Doktorantom, z którymi dzieliłem biuro Joannie Papierskiej, Maciejowi Ścieśkowi, Karolinie Połczyńskiej oraz Aleksandrowi Rodkowi jestem wdzięczny za przyjacielską atmosferę, dzięki której prowadzenie badań było jeszcze przyjemniejsze. Wiele z kontaktów zainicjowanych wspólną pracą na Wydziale Fizyki Uniwersytetu Warszawskiego przerodziło się w wieloletnie wartościowe przyjaźnie.

Dziękuję dr. Alberto Amo za możliwość odbycia stażu w jego grupie w laboratorium PhLAM na Uniwersytecie w Lille. Kolegom z laboratorium, z którymi miałem przyjemność pracować dr. Omarowi Jamadi oraz Bastianowi Real Elgueda szczególnie dziękuję za miłe przyjęcie do grupy, za wspólny czas spędzony w laboratorium oraz dyskusje na temat zagadnień teoretycznych. Podziękowania należą się również grupie z laboratorium C2N w Palaiseau kierowanej przez prof. Jacqueline Bloch, współpracującej z grupą z Lille, za wielogodzinne wideokonferencje, które pozwoliły na głębsze zrozumienie zjawisk fizycznych w sieciach polarytonowych. Wyjątkowa życzliwość, optymizm i entuzjazm, którym obdarzyli mnie współpracownicy z Lille i Palaiseau pozwoliły mi na nowo odnaleźć satysfakcję z wykonywania

pracy naukowej.

Na koniec dziękuję wszystkim moim przyjaciołom, którzy przyczynili się finalizacji tej pracy. Trudno byłoby tu ich wszystkich wymienić, ale chciałbym wyrazić wdzięczność każdej osobie, którą spotkałem na swojej drodze i była dla mnie źródłem motywacji do pokonywania trudności. Nie mogę zakończyć podziękowań bez wyrażenia szczególnej wdzięczności mojej rodzinie za wsparcie, którego doświadczyłem w ciągu wszystkich lat. Specjalne podziękowania należą się moim Rodzicom, którzy zawsze starali się mi towarzyszyć w wybranej przeze mnie drodze życiowej. Żałuję, że mój Tata nie doczekał końca moich studiów doktorskich i nie był w stanie przeczytać finalnej wersji niniejszej rozprawy.

Wprowadzenie

Przedmiotem badań opisanych w niniejszej rozprawie są efekty laserowania z półprzewodnikowych mikrownęk optycznych wytworzonych z materiałów selenkowych i tellurkowych.

Laserowanie to nieliniowe wzmocnienie światła w ośrodku aktywnym umieszczonym we wnęce rezonansowej powstałe w wyniku zewnętrznego pompowania optycznego lub elektrycznego. Światło emitowane w wyniku tego procesu składa się z fotonów o prawie takiej samej energii i pędzie, więc w uproszczeniu może być opisywane jedną, wspólną funkcją falową. Od momentu zaprezentowania pierwszego działającego lasera rubinowego w 1960 roku przez Theodore'a H. Maimana [1] opracowano całą gamę systemów laserujących pracujących w szerokim zakresie spektralnym, o różnej mocy progowej, oraz o różnej charakterystyce czasowej. Korzyści płynące z precyzyjnej kontroli parametrów emitowanego światła, takie jak monochromatyczność, kierunkowość emisji, koherencja oraz wysoka intensywność sprawiły, że zjawiska laserowania od lat nieprzerwanie są w centrum zainteresowań wielu grup badawczych. Przyniosły one przełom w wielu dziedzinach nauki, w szczególności w fizyce materii skondensowanej oraz fotonice. Na pograniczu tych dwóch dziedzin efekty laserowania obserwowane w półprzewodnikowych mikrownękach optycznych zyskały szczególne znaczenie w badaniach fundamentalnych i pozwoliły na uzyskanie odpowiedzi na kluczowe pytania dotyczące oddziaływania światło-materia. Badania zjawiska koherentnej emisji w strukturach półprzewodnikowych wpłynęły także na rozwój wielu urządzeń powszechnie stosowanych w różnych aspektach działalności człowieka m.in. w nośnikach danych oraz łączności światłowodowej. Doceniana jest zwłaszcza ich wysoka wydajność, niewielkie rozmiary oraz niskie

koszty produkcji i eksploatacji. W kontekście rozwoju urządzeń komercyjnych szczególnie obiecująca wydaje się możliwość produkcji emiterów koherentnego światła, które wykorzystywałyby efekty polarytonowe. W porównaniu do konwencjonalnego lasera, w którym akcja laserowa występuje tylko wtedy, gdy osiągnięta zostanie inwersja obsadzeń, laserowanie polarytonowe zachodzi w zakresie znaczenie niższych mocy pobudzania. Powodem tego jest jakościowo inny mechanizm działania bazujący na stymulowanym parametrycznym rozpraszaniu polarytonów ekscytonowych.

Pierwszy laser półprzewodnikowy bazujący na złączu $p - n$ wykonanym z arsenku galu zaprezentowany został w 1962 roku przez Roberta Noela Halla [2]. Urządzenie to pracowało w niskich temperaturach, co znacznie ograniczało potencjalne zastosowania komercyjne. Jednakże, w latach siedemdziesiątych wraz z rozwojem technologii wzrostu monokryształów skutkującym opracowaniem m.in. techniki wzrostu epitaksjalnego z wiązek molekularnych (ang. *Molecular Beam Epitaxy*, MBE) otworzyły się nowe możliwości produkcji wysokiej jakości warstw półprzewodnikowych z precyzyjnie kontrolowanymi parametrami wzrostu oraz małą liczbą defektów strukturalnych. Produkcja cienkich warstw epitaksjalnych pozwoliła na wytworzenie struktury półprzewodnikowej, w której swoboda ruchu nośników została ograniczona w jednym z kierunków dzięki zastosowaniu studni kwantowej. Pierwszy laser wykorzystujący studnie kwantowe jako materiał aktywny został zaprezentowany w 1975 roku przez Bell Laboratories [3], a w 1979 roku użyto po raz pierwszy wnęki rezonansowej wykonanej z użyciem zwierciadeł typu braggowskiego w konfiguracji VCSEL (ang. *Vertical Cavity Surface Emitting Laser*) [4]. Osiągnięcia te wyznaczyły trend późniejszego rozwoju urządzeń laserujących bazujących na ciele stałym powszechnie używanych w komercyjnych zastosowaniach do dziś.

Niezależnie od prac nad laserowaniem rozważania teoretyczne prowadzone przez Satyendrę Natha Bosego i Alberta Einsteina [5, 6] doprowadziły do opracowania podstaw teoretycznych zjawiska kondensacji cząstek o spinie całkowitym (bozonów) rozumiane jako makroskopowe obsadzenie stanu podstawowego. Problemy technologiczne wynikające z potrzeby uzyskania ekstremalnych warunków eksperymentu, czyli przede wszystkim ultra niskich temperatur spowodowały, że pierwsza obserwacja kondensatu na zimnych atomach nastąpiła dopiero w 1995 roku [7]. W fizyce ciała stałego pierwszym kandydatem do wytworzenia kondensatu były ekscytyny, czyli kulombowsko związane pary elektron-dziura tworzące

kompozytowy bozon [8]. Jednakże funkcje falowe ekscytonów przy dużej gęstości wzajemnie się przenikają, ujawniając fermionową¹ naturę składowych ekscytonu i osłabiając przy tym efekt kondensacji. Pod koniec lat pięćdziesiątych dwudziestego wieku zostało opisane niezależnie przez Hopfielda [9] i Agranovicha [10] oddziaływanie, które doprowadziło do wyłonienia innego kandydata - polarytonu ekscytonowego będącego rezultatem silnego sprzężenia ekscytonu i fotonu.

W 1992 roku rozwój technologiczny wzrostu struktur fotonicznych opartych na zwierciadłach Bragga oraz zrozumienie fizyki oddziaływania światło-materia pozwoliły na zaprezentowanie po raz pierwszy eksperymentalnego wyniku oddziaływania ekscytonów i fotonów w reżimie silnego sprzężenia [11], co otworzyło drogę do późniejszych badań kondensatów polarytonów ekscytonowych. W tej realizacji studnie kwantowe umieszczone zostały w maksimum pola elektrycznego modu półprzewodnikowej mikrownęki optycznej. W wyniku dopasowania energii modu do energii emisji studni kwantowej zaobserwowano charakterystyczne odepchnięcie linii spektralnych będące oznaką występowania silnego sprzężenia, czyli stanu, w którym następuje wielokrotna wymiana energii między modem wnękowym i emiterem. Pierwsze eksperymenty wykazujące kondensację Bosego-Einsteina mikrownękowych polarytonów ekscytonowych leżące u podstaw zjawiska laserowania polarytonowego zostały zaprezentowane w 2006 roku [12] dla struktury ze studnią kwantową CdTe oraz w 2007 roku [13] dla struktury, w którym emiterem była studnia kwantowa GaAs.

W mikrownękach półprzewodnikowych mod wnęki optycznej jest sprzężony z przejściem ekscytonowym emitera umieszczonego we wnęce. W szczególnym przypadku, gdy siła sprzężenia między ekscytonem i modem jest większa niż straty wynikające np. z niedoskonałości luster mikrownęki, układ pracuje w reżimie silnego sprzężenia, w którym foton z wnęki może być wielokrotnie wyemitowany i ponownie absorbowany. Proces spójnej wymiany energii między fotonami i ekscytonami powoduje powstanie nowych stanów własnych układu zwanych polarytononami. Czas życia pojedynczego polarytonu wynosi kilka pikosekund, jednakże w warunkach ciągłego pobudzania tworzą one stabilny kondensat o spójności przestrzennej wynoszącej ponad sto mikrometrów. Lasery polarytonowe oparte na zjawisku kondensacji Bosego-Einsteina, w którym makroskopowa liczba kwazicząstek zajmuje pojedynczy

¹Elektrony i dziury są cząstkami o spinie połówkowym -fermionami

stan kwantowy, są przykładem układów, w których własnościami rządzą prawa mechaniki kwantowej w skali makroskopowej. Teoretyczną koncepcję emitera koherentnego światła, wykazującego około dwa rzędy wielkości niższy próg laserowania od konwencjonalnego lasera, przedstawił po raz pierwszy w 1996 roku Ataç İmamoğlu [14]. Eksperymentalna realizacja pomysłu została zaprezentowana w 2003 roku przez Hui Deng [15]. Struktury rozważane w tych pracach bazowały na strukturze półprzewodnikowej mikrownęki optycznej ze studniami kwantowymi, która do dziś jest powszechnie stosowaną platformą do badań oddziaływania światło-materia, zarówno w reżimie silnego, jak i słabego sprzężenia.

W ogólności można zaobserwować trzy typy laserowania w emisji z układu studni kwantowej sprzężonej z półprzewodnikową mikrownęką optyczną. W silnym sprzężeniu jest to laserowanie polarytonowe² wynikające ze stymulowanego rozpraszania polarytonów z udziałem fononów akustycznych prowadzące do kondensacji polarytonów w najniższym dostępnym stanie energetycznym. Taki kondensat emituje światło o właściwościach podobnych do światła emitowanego przez typowy laser, jednakże inwersja obsadzeń nie jest konieczna do zainicjowania procesu. W reżimie słabego sprzężenia występują dwa typy laserowania fotonowego angażującego ekscytyny lub plazmę elektronowo-dziurową. W kolejnych rozdziałach zostaną dokładniej omówione poszczególne typy laserowania. Rozszerzeniem prac nad układami laserującymi są wielopoziomowe systemy polarytonowe, które stanowią atrakcyjną platformę do badań zjawisk nieliniowych wynikających z silnego oddziaływania światło-materia. W dalszych rozdziałach zostaną zaprezentowane efekty laserowania polarytonowego z układu sprzężonych mikrownęk, w których możliwość wymiany energii między gałęziami polarytonowymi umożliwia obserwację laserowania polarytonowego o zmiennym i kontrolowanym stosunku intensywności linii emisyjnych. Ponadto zdegenerowane poziomy energetyczne umożliwiają występowanie zdegenerowanego w energii parametrycznego rozpraszania i oscylacji polarytonów.

²W literaturze z zakresu fizyki ciała stałego określenie *laser polarytonowy* stosuje się do opisu koherentnej emisji z udziałem polarytonów, jednakże ten typ emisji nie spełnia definicji laserowania, ponieważ nie występuje w nim emisja wymuszona związana z inwersją obsadzeń. Termin *laserowanie* w tym przypadku używany jest poprzez analogię do właściwości emisyjnych konwencjonalnego lasera jak np. spójność i związane z nią zawężenie linii emisyjnej oraz nieliniowe wzmocnienie w okolicach wartości progowej.

0.1 CEL PRACY

W kontekście badań nad laserowaniem polarytonowym materiały półprzewodnikowe z grup II-VI pozostają zdecydowanie mniej eksploatowane w porównaniu do ich odpowiedników z grup III-V. Głównym celem niniejszej pracy jest zbadanie i opisanie zjawisk laserowania ze struktur mikrownękowych wykonanych z materiałów tellurkowych i selenkowych. Materiały te charakteryzują się stosunkowo dużą siłą oscylatora ekscytonu w stosunku do częściej badanych w tym kontekście materiałów z grup III-V. Skutkuje to większą siłą oddziaływania światło-materia, a w konsekwencji większą odpornością na zewnętrzne warunki. Możliwość tworzenia materiałów laserujących pracujących stabilnie w wyższych temperaturach jest szczególnie istotna z punktu widzenia potencjalnych zastosowań praktycznych. Struktury bazujące na półprzewodnikach II-VI wykazują jednak nieuporządkowanie krystaliczne, które powoduje, że są materiałem trudniejszym technologicznie do zastosowań fotonicznych. Wykonanie struktur użytych do badań w niniejszej pracy wymagało optymalizacji technologii wytwarzania mikrownęk optycznych opartych na tych związkach w celu zmniejszenia gęstości niedoskonałości strukturalnych, jak również zrozumienia wpływu defektów krystalicznych na efekty laserowania.

0.2 UKŁAD PRACY

Rozprawa doktorska zawiera pięć rozdziałów:

ROZDZIAŁ 1 zawiera przegląd wiedzy na temat układów mikrownękowych oraz efektów laserowania wynikających ze sprzężenia światło-materia. Zaprezentowano w nim podstawy fizyki polarytonów mikrownękowych poprzez opis ich dwóch podstawowych składników - fotonów uwięzionych w mikrownęce optycznej i ekscytonów związanych w studni kwantowej półprzewodnika. Szczegółowo omówiono efekty laserowania oraz zjawiska im towarzyszące w warunkach silnego, oraz słabego sprzężenia.

ROZDZIAŁ 2 skupia się na materiałach oraz technikach wzrostu epitaksjalnego i mikrostrukturyzacji wykorzystanych do wyprodukowania struktur badanych w niniejszej pracy.

Zaprezentowano również przegląd badanych próbek omawianych w dalszych rozdziałach.

ROZDZIAŁ 3 prezentuje metody spektroskopowe wykorzystane w pracy. Omówione w nim są również wykorzystane układy i techniki pomiarowe. Rozdział ten został uzupełniony o opis opracowanej na potrzeby niniejszej pracy metody alternatywnego potwierdzania warunków silnego sprzężenia i wyznaczania rozszczepienia Rabiego w układach, w których ze względu na użyty system materiałowy nie jest to możliwe przy użyciu powszechnie stosowanych metod.

ROZDZIAŁ 4 demonstruje badania laserowania w reżimie silnego i słabego sprzężenia światła i materii z układu bazującego na strukturze wykonanej z selenków i tellurków z pojedynczą studnią kwantową $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$. Rozdział zawiera opis wpływu ograniczenia objętości modu optycznego na emisję ze struktur mikrownękowych. Ponadto zawiera opis dynamiki laserowania z mikrownęk z supersiecią $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$.

W ROZDZIALE 5. prezentowane są badania przeprowadzone na układzie dwóch mikrownęk optycznych wykonanych w systemie tellurkowym. Omawiany system bazuje na wertykalnie sprzężonych mikrownękach planarnych tworzących wielopoziomowy system polarytonowy. Pokazano, że przy nierezonansowym pobudzaniu możliwa jest obserwacja laserowania polarytonowego ze wspólnym progiem laserowania z dwóch dolnych gałęzi polarytonowych. Wykazano również występowanie zdegenerowanego w energii rozpraszania parametrycznego polarytonów w warunkach pobudzania nierezonansowego. Dynamika laserowania została opisana za pomocą modelu teoretycznego bazującego na otwarto-dysypatywnym równaniu Grossa-Pitajewskiego, w którym zastosowano równania kinetyczne opisujące dynamikę nieaktywnego i aktywnego rezerwuaru ekscytonów.

Ostatnią część stanowi podsumowanie pracy wraz z perspektywami rozwoju omawianej tematyki.

To those who do not know mathematics it is difficult to get across a real feeling as to the beauty, the deepest beauty, of nature ... If you want to learn about nature, to appreciate nature, it is necessary to understand the language that she speaks in.

— Richard P. Feynman

The Character of Physical Law (1965)

1

Wprowadzenie do polarytonowych systemów mikrownękowych

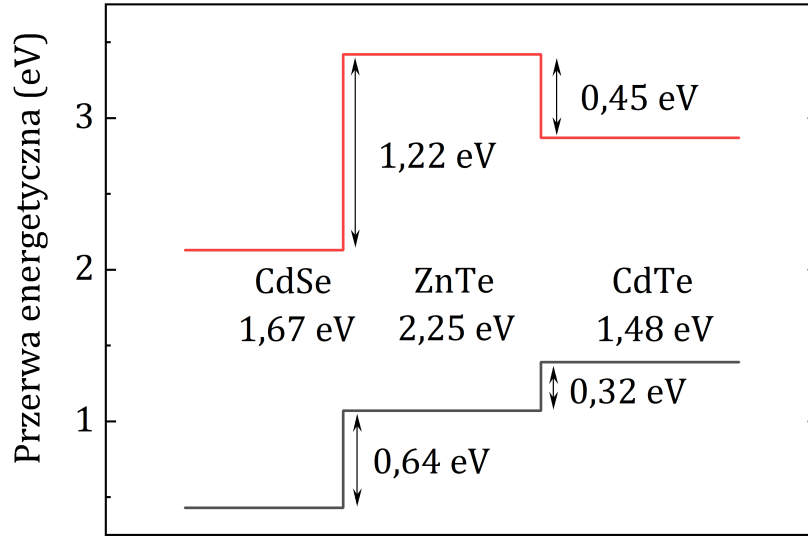
Poniższy rozdział zawiera podstawowe informacje na temat podjętej tematyki badawczej. Wprowadza on opis kwazicząstek takich jak ekscytony i polarytony ekscytonowe w strukturach półprzewodnikowych i porównuje ich właściwości w materiałach objętościowych oraz strukturach o obniżonej wymiarowości. Przedstawione zostało pojęcie mikrownęki optycznej pozwalającej na uzyskanie wzmocnienia oddziaływania między fotonami i ekscytonami. Opisane w nim zostały efekty laserowania możliwe do zaobserwowania w pojedynczych oraz sprzężonych mikrownękach optycznych w konfiguracji VCSEL. Omówione są dwa typy oddziaływania światło-materia, mianowicie: słabe i silne sprzężenie między ekscytonem a modem optycznym planarnej mikrownęki. Następnie wskazane zostały różnice między konwencjonalnym laserem i laserem polarytonowym oraz omówione zostały efekty

prowadzące do koherentnej emisji w tych dwóch reżimach ze szczególną uwagą skupioną na koherentnej emisji z kondensatu Bosego-Einsteina polarytonów ekscytonowych. Rozwinięciem idei układów mikrownękowych jest prezentacja wielopoziomowych systemów polarytonowych bazujących na planarnych mikrownękach, pozwalających na obserwację efektów niewystępujących w układach dwupoziomowych, takich jak zdegenerowane w energii i pędzie rozpraszanie oraz oscylacje parametryczne.

1.1 EKSCYTONY W PÓŁPRZEWODNIKACH

Fizyka materii skondensowanej bada i opisuje głównie systemy składające się z wieloatomowych kryształów. W układach tych w wyniku wzajemnych oddziaływań chmur elektronowych, a w szczególności elektronów walencyjnych następuje tworzenie wiązań chemicznych. Oddziaływania te prowadzą do zastąpienia dyskretnych poziomów energetycznych atomów złożoną strukturą pasmową ciał stałych. Materiały półprzewodnikowe w większości charakteryzują się obecnością przerwy energetycznej oddzielającej pasmo walencyjne od pasma przewodnictwa. Stan podstawowy półprzewodnika odpowiada całkowicie zapełnionemu pasmu walencyjnemu i pustemu pasmu przewodnictwa. Jednakże cechą charakterystyczną półprzewodników jest to, że szerokość przerwy energetycznej jest na tyle mała, że elektron z pasma walencyjnego można stosunkowo łatwo przenieść do stanu wzbudzonego przez pompowanie optyczne lub elektryczne. W najprostszym przypadku wzbudzenia optycznego w półprzewodnikach zaabsorbowany foton powoduje przeniesienie elektronu z pasma walencyjnego do pasma przewodnictwa. W wyniku tego zjawiska układ o sumarycznej liczbie elektronów N zawiera jeden elektron w paśmie przewodnictwa oraz $N - 1$ w paśmie walencyjnym. Do matematycznego opisu zachowania $N - 1$ elektronów pozostałych w paśmie walencyjnym stosuje się opis dodatnio naładowanej kwazicząstki nazywanej dziurą, co sprowadza problem oddziaływania elektronów z pasma walencyjnego z elektronem w paśmie przewodnictwa do opisu oddziaływania dwóch ciał. W niniejszej pracy skorzystano z materiałów krystalizujących w strukturze blendy cynkowej i charakteryzujących się prostą przerwą energetyczną w punkcie Γ (głównie CdSe, CdTe, ZnTe) [16]. Dodatnia krzywizna pasma przewodnictwa i ujemna krzywizna pasma walencyjnego świadczą o przeciwnym znaku masy

efektywnej elektronów i dziur. Porównanie wartości przerw energetycznych materiałów CdSe, ZnTe, oraz CdTe zostało przedstawione na rysunku 1.1.1.



Rysunek 1.1.1: Energia pasma walencyjnego i przewodnictwa materiałów CdSe, CdTe, oraz ZnTe, na których bazują omawiane w pracy struktury. Przedstawione wartości pochodzą z publikacji [17–19].

Elektrony z pasma przewodnictwa można traktować jak cząstki o spinie $\frac{1}{2}$, co wynika z tego, że ich funkcje falowe zbudowane są z orbitali s kationów. Pasma walencyjne zbudowane z orbitali p anionów jest rozszczepione w $k = 0$ na dwie grupy podpasm w wyniku oddziaływania orbitalnego momentu pędu ze spinami elektronowymi. Typowo w badanej klasie materiałów pierwsza z nich występująca w niższej energii odszczepiona w wyniku oddziaływania spin-orbita posiada całkowity moment pędu równy $J = \frac{1}{2}$. Druga grupa zdegenerowanych podpasm o całkowitym momencie pędu równym $J = \frac{3}{2}$ znajdująca się w wierzchołku pasma walencyjnego jest zdegenerowana w $k = 0$. Ich krzywa dyspersji wskazuje na występowanie stanów o różnej masie efektywnej - ciężkodziurowych i lekkodziurowych odpowiednio o rzucie całkowitego momentu pędu na oś kwantyzacji wynoszącym $J = \pm \frac{3}{2}$ i $J = \pm \frac{1}{2}$.

Kwazicząstka składająca się z elektronu z pasma przewodnictwa i dziury z pasma walencyjnego związanych kulombowsko określana jest mianem ekscytonu. Para ta będąca dipolem elektrycznym, w zależności od względnego rozmiaru promienia Bohra w stosunku do komórki elementarnej kryształu, opisywana jest za pomocą modelu Frenkla (gdy promień Bohra ekscytonu jest rzędu rozmiaru komórki elementarnej) lub Wanniera-Motta (gdy stanowi on dziesiątki wielkości rozmiaru komórki sieci krystalicznej), jak w przypadku badanych materiałów. Ekscytony w stanie podstawowym można opisać za pomocą Hamiltonianu analogicznego jak w opisie atomu wodoru:

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}\nabla^2 f(\mathbf{r}) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 r}f(\mathbf{r}) = Ef(\mathbf{r}) \quad (1.1)$$

gdzie μ to masa zredukowana definiowana jako $\mu = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}$, gdzie m_e oraz m_h to masy efektywne elektronu i dziury. Parametr $r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$ określa odległość między elektronem i dziurą w trójwymiarowej przestrzeni. We wzorze tym ϵ to względna przenikalność elektryczna półprzewodnika, ϵ_0 to stała dielektryczna. Powyższe równanie dla stanu podstawowego ekscytonu, gdzie $f_{1s}(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{\pi a_B^3}} e^{-r/a_B}$, a promień Bohra wynosi $a_B = \frac{\hbar^2 \epsilon \epsilon_0}{4\pi \mu e^2}$ po uproszczeniu przybiera postać:

$$E_B = \frac{\hbar^2}{2\mu a_B^2} \quad (1.2)$$

i pozwala wyznaczyć energię stanu podstawowego ekscytonu.

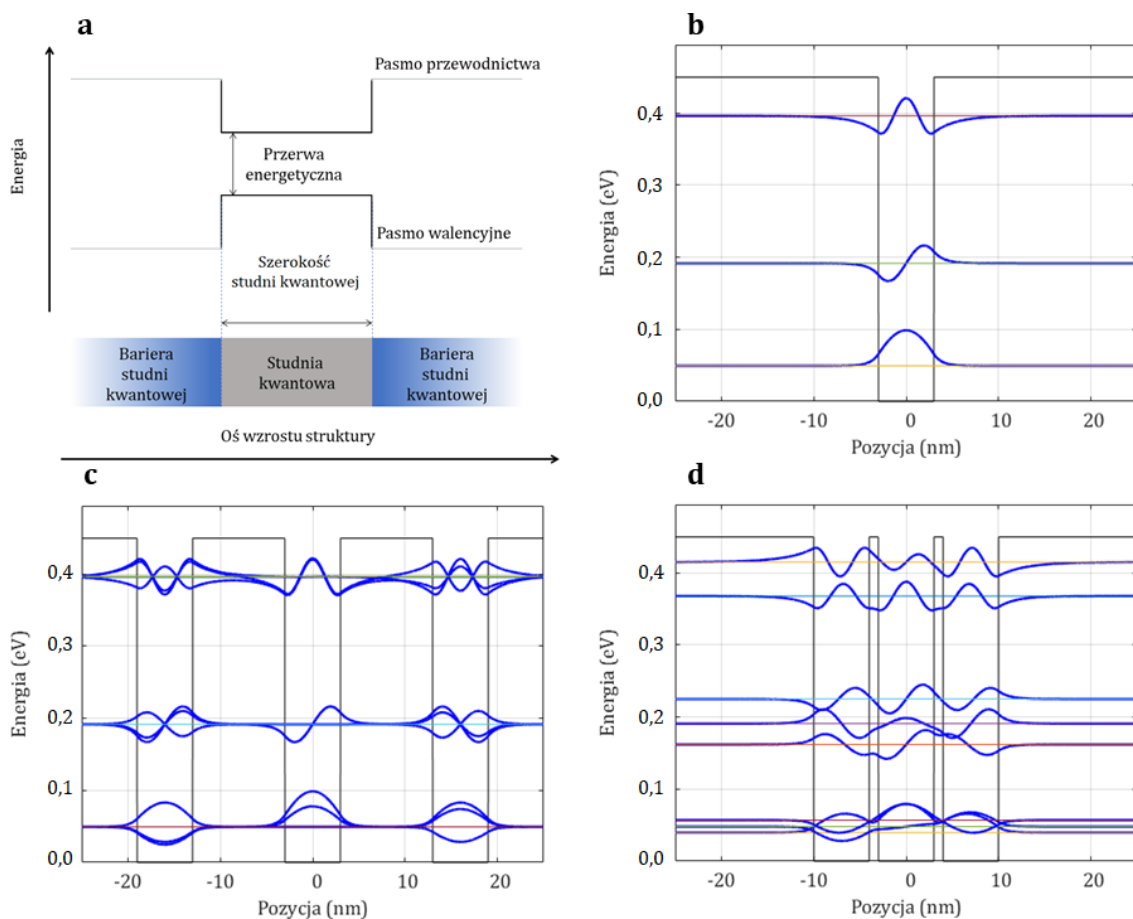
W wyniku występowania dwóch typów dziur (ciężkie i lekkie) istnieją również dwa typy ekscytonów, z których ekscyton utworzony w wyniku oddziaływania elektronu z ciężką dziurą jest silniej związany. Stosunkowo niska wartość E_B dla materiałów takich jak CdTe, CdSe (rzędu 10 meV) nie pozwala na obserwację efektów ekscytonowych w temperaturach wyższych niż kriogeniczne. Dwa komponenty tworzące ekscyton tj. elektron i dziura, są fermionami, które w wyniku oddziaływania kulombowskiego w przybliżeniu tworzą kompozytową kwazicząstkę o pseudospinie całkowitym. Pomimo różnic między ekscytonami i typowymi bozonami, gaz ekscytonowy może być traktowany jak gaz Bosego. [20] Opis ekscytonów jako bozonów ogranicza się jednak do przypadku niskiej gęstości ekscytonów. Przy wysokiej gęstości

przyciąganie kulombowskie między elektronami i dziurami jest ekranowane przez obecność dużej liczby cząstek, co powoduje dysocjację ekscytonów [21]. Ekscytony w półprzewodnikach objętościowych mogą przemieszczać się swobodnie w trójwymiarowej przestrzeni rzeczywistej, podczas gdy w nanostrukturach ich ruch ograniczony jest w jednym (studnie kwantowe), dwóch (druty kwantowe) lub trzech kierunkach (kropki kwantowe). Wprowadzenie struktur o obniżonej wymiarowości pozwoliło na badanie oddziaływania światła i materii w bardziej kontrolowany sposób. Studnie kwantowe znalazły powszechne zastosowanie głównie w elektronice i optoelektronice, a ich właściwości były badane przez ostatnie dekady. Pojedyncza studnia kwantowa jest heterostrukturą tworzoną przez cienką warstwę półprzewodnika umieszczoną między warstwami o większej przerwie energetycznej. Aby zaobserwować efekty kwantowe, grubość warstwy tworzącej studnię kwantową musi być porównywalna lub mniejsza niż promień ekscytonu Bohra w materiale objętościowym. W idealnie dwuwymiarowym przypadku promień Bohra $a_B^{2D} = a_B^{3D}/2$, więc energia wiązania ekscytonu wynosi $E_b^{2D} = 4E_b^{3D}$ [22] jednakże w przypadku realnej struktury wartość ta jest mniejsza i występuje w przedziale między E_b^{3D} a E_b^{2D} w zależności od stosunku grubości studni kwantowej do promienia Bohra materiału. Uproszczoną strukturę pasmową studni kwantowej pokazano na rysunku 1.1.2 a. Funkcja falowa została przedstawiona na rysunku 1.1.2 b.

Struktura studni kwantowej wiąże nośniki w jednym wymiarze, co w praktyce oznacza, że ruch elektronów i dziur ograniczony jest w jednym wyróżnionym kierunku, który jest zgodny z kierunkiem wzrostu struktury, przy zachowaniu swobody ruchu w dwóch pozostałych kierunkach. Precyzyjna kontrola nad parametrami wzrostu struktur umożliwia tworzenie zaawansowanych emiterów kwantowych o zadanej charakterystyce spektralnej. W celu zwiększenia siły wiązania ekscytonu, która bezpośrednio przekłada się na wydajność efektów polarytonowych, typowo stosuje się jako emiter kilka studni kwantowych [23]. Zależnie od stopnia przekrycia funkcji falowych ekscytonów pochodzących ze studni kwantowych można wyróżnić wielostudnie (rysunek 1.1.2 c) i supresieci (rysunek 1.1.2 d).

Dyspersja ekscytonu dla n -tego poziomu energetycznego studni kwantowej określona jest wzorem:

$$E_{X_n}(k_{||}) = E_g + E_e + E_h + \frac{\hbar^2 k_{||}^2}{2m_X} - \frac{E_b}{(n - \frac{1}{2})^2} \quad (1.3)$$



Rysunek 1.1.2: **a** Schemat struktury pasmowej studni kwantowej. Z powodu nieciągłości pasma walencyjnego i przewodnictwa ruch elektronów oraz dziur jest ograniczony w kierunku prostopadłym do warstwy tworzącej studnię kwantową. Obliczona energia oraz funkcja falowa dwóch najniższych stanów **b** pojedynczej studni kwantowej o szerokości 6 nm **c** wielostudni o szerokości 6 nm z barierą 10 nm, oraz **d** supersieci o szerokości 6 nm z barierą 1 nm. We wszystkich przypadkach przyjęto różnicę energii między pasmami przewodnictwa materiałów 0,45 eV, co odpowiada strukturze opartej na związkach CdTe i ZnTe (patrz rysunek 1.1.1).

gdzie E_g to wartość przerwy energetycznej, E_e , E_h to odpowiednio energie pasma przewodnictwa i pasma walencyjnego, $\hbar$ stała Plancka, $k_{\parallel}$ wektor falowy, m_X masa ekscytynu będąca sumą mas ekscytynu i dziury, a E_b energia wiązania ekscytynu. W szczególności dla stanu podstawowego $n = 1$ w $k_{\parallel} = 0$ wyrażenie 1.3 upraszcza się do formy $E_{X_1}(0) = E_g + E_e + E_h - 4E_b$. Należy zaznaczyć, że tak jak zostało przytoczone wcześniej, w przypadku idealnej studni kwantowej energia wiązania ekscytynu wynosi $E_b^{2D} = 4E_b^{3D}$.

1.1.1 MIKROWNĘKI PÓŁPRZEWODNIKOWE

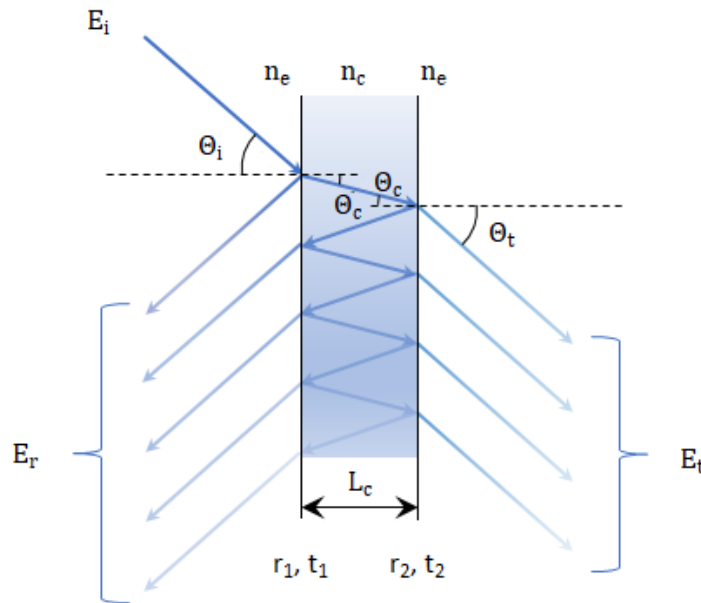
W celu wzmocnienia interakcji między ekscytonami i fotonami, które mogłoby doprowadzić do silnego sprzężenia światło-materia, stosowane są struktury fotoniczne tworzące mikrownękę optyczną. Metoda ta zapewnia wydajniejsze związanie światła oraz precyzyjną kontrolę jego sprzężenia z wzbudzeniami ekscytonowymi w materii.

Mikrownęka półprzewodnikowa składa się z obszaru aktywnego, którego grubość jest równa całkowitej wielokrotności połowy długości fali λ uwięzionej między parą zwierciadeł o wysokim współczynniku odbicia. Światło uwięzione w ten sposób ulega konstruktywnej i destruktywnej interferencji, tworząc falę stojącą spełniającą relację $nd = \frac{\lambda}{2}N$, gdzie n - współczynnik załamania, d - grubość warstwy, N - numer modu optycznego. W rezultacie powstają mody wnękowe o ściśle określonej charakterystyce widmowej. Typowym przykładem takiej wnęki jest struktura planarna typu Fabry-Pérot składająca się z dwóch metalowych zwierciadeł oddzielonych medium o określonym współczynniku załamania światła n_c . Schemat takiej struktury został przedstawiony na rysunku 1.1.3. Współczynnik transmisji T i odbicia R takiej struktury zakładając, że $n_e = 1$, wrażony jest zależnościami:

$$E_t = E_i t_1 t_2 e^{i\varphi/2} \sum_{j=0}^{\infty} (r_1 r_2 e^{i\varphi})^j, \quad (1.4)$$

$$T = \left| \frac{E_t}{E_i} \right|^2, \quad R = 1 - T, \quad (1.5)$$

gdzie E_t oraz E_i to natężenie fali transmitowanej i padającej, r_1 , r_2 , t_1 , t_2 to współczynniki odbicia



Rysunek 1.1.3: Schematyczny rysunek wnęki typu Fabry-Pérot składającej się z dwóch zwierciadeł, oddzielonych warstwą o długości L_c i współczynniku załamania światła n_c . Wartość n_e oznacza współczynnik załamania światła otoczenia sąsiadującego z lustrami. Wartości r_1 i r_2 oznaczają współczynniki odbicia luster, a t_1 i t_2 ich współczynniki transmisji.

i transmisji luster tworzących wnękę. Wartość φ określa zmianę fazy i wyrażane jest zależnością $\varphi = 4\pi n_c L_c \cos(\theta_c) / \lambda$, w którym θ_c to kąt załamania światła po przejściu przez pierwsze lustro, n_c to współczynnik załamania światła w materiale tworzącym wnękę, L_c grubość wnęki, a λ to długość fali światła. Warunkiem konstruktywnej interferencji jest to, że zmiana fazy fali światła jest całkowitą wielokrotnością 2π podczas jednego pełnego okrążenia we wnękę. W przypadku fal rozchodzących się pod kątem innym niż prostopadły do płaszczyzny luster warunek konstruktywnej interferencji powoduje paraboliczną dyspersję, z której wynika masa efektywna fotonu uwięzionego we wnękę. Aby zmaksymalizować natężenie pola elektromagnetycznego we wnękę, można zminimalizować liczbę maksimów w rezonatorze poprzez zastosowanie najmniejszej możliwej szerokości wnęki spełniającej warunek konstruktywnej interferencji. W szczególności najsilniejsze sprzężenie światła z materią uzyskuje się, gdy spełniony jest

warunek $nd = \frac{\lambda}{2}$, co odpowiada jednemu maksimum w środku mikrownęki.

MIKROWNĘKI OPARTE NA ZWIERCIADŁACH BRAGGA

W zastosowanej w tej pracy strukturze typu VCSEL emiter kwantowy w postaci studni kwantowej wiążącej ekscytyny jest umieszczony wewnątrz planarnej mikrownęki optycznej typu Fabry-Pérot pułapkującej fotony. W praktyce zwierciadła Bragga (*ang. Distributed Bragg reflector, DBR*) zbudowane są z okresowo powtarzającej sekwencji warstw o wysokim i niskim współczynniku załamania, których grubość optyczna wynosi $\lambda/4n$. Zasada działania zwierciadła polega na konstruktywnej i destruktywnej interferencji fal transmitowanych i odbitych od kolejnych międzypowierzchni między warstwami.

Wraz z rozwojem technologii epitaksjalnych takich jak MBE, struktury wykorzystujące jednowymiarowe kryształy fotoniczne typu braggowskiego zyskały popularność ze względu na możliwość osiągnięcia wysokiego współczynnika odbicia, niską absorpcję światła, oraz stosunkowo prostą możliwość integracji z półprzewodnikowym emitorem.

Zakres spektralny, w którym struktura wykazuje wysoki współczynnik odbicia, nazywany jest fotoniczną przerwą wzbronioną lub *stopbandem*. Zakres ten wyrażony w energii ΔE można oszacować, używając wyrażenia:

$$\frac{\Delta E}{E_0} = \frac{4}{\pi} \arcsin \left(\frac{|n_1 - n_2|}{n_1 + n_2} \right) \approx \frac{2}{\pi} \frac{\Delta n}{\bar{n}} \quad (1.6)$$

gdzie E_0 to energia fotonu, na którą projektowane jest zwierciadło (środek *stopbandu*), n_1 i n_2 to współczynniki załamania warstw tworzących parę braggowską, Δn to kontrast współczynników załamania, a $\bar{n}$ to średnia wartość współczynników n_1 i n_2 . Szerokość pasma przerwy wzbronionej oraz współczynnika odbicia zależy zatem od kontrastu współczynnika załamania światła między poszczególnymi warstwami i liczby par braggowskich w strukturze.

Zależność współczynnika odbicia R struktury od liczby par Bragga N można oszacować

przy pomocy równania [23] przy założeniu, że $N \gg 1$ oraz $n_1 < n_2$:

$$R \approx 1 - 4 \frac{n_i}{n_t} \left(\frac{n_1}{n_2} \right)^{2N} \quad (1.7)$$

gdzie n_i to współczynnik załamania otoczenia od strony padania fali, a n_t od strony transmisyjnej.

Z technologicznego punktu widzenia możliwość precyzyjnej kontroli grubości i składu warstw oraz szeroki wybór dostępnych materiałów sprawia, że stosunkowo łatwo można dobrać optymalne parametry zwierciadła do zakresu spektralnego szerokiej gamy emiterów kwantowych. Jednakże dla realnej struktury szerokość *stopbandu* współczynnik odbicia w dużej mierze zależy od jakości wykonania warstw składających się na lustro.

W celu określenia jakości wnęki wprowadzono pojęcie dobroci wnęki Q , która określa zdolność utrzymywania fotonu w mikrownęce. W systemach fonicznych opisuje ono liczbę obiegów, które może zrobić foton we wnęcie, zanim opuści strukturę przez lustro wnęki. W związku z tym wyrażenie $\frac{1}{Q}$ można interpretować jako prędkość wyciekania fotonów przez lustra lub w wyniku rozproszeń i absorpcji w mikrownęce. Czas życia fotonu we wnęcie wyraża się wzorem $\tau = Q \frac{\hbar}{E}$, gdzie E oznacza energię modu. Typowa wartość τ przy założeniu, że $Q = 10000$, a szerokość $3 \mu m$ wynosi ok. $16 ps$.

Ilościowo dobroć wnęki można wyrazić za pomocą równania:

$$Q = \frac{E}{\delta E} \quad (1.8)$$

gdzie E oznacza energię modu, a δE jego szerokość połówkową.

Opis dobroci wnęki za pomocą równania 1.8 jest adekwatny do mikrownęk wykazujących niskie straty, czyli wysokie wartości Q . W tej pracy w celu scharakteryzowania i porównania próbek pomijana jest absorpcja w materiale, z którego wykonana jest mikrownęka, ponieważ w zakresie spektralnym, w którym badane są próbki, założenie o niskiej absorpcji w przypadku badanych materiałów jest prawdziwe.

Rozkład pola elektromagnetycznego w wielowarstwowej strukturze wynika z interferencji fal transmitowanych oraz odbijanych od granic poszczególnych warstw

składających się na strukturę. W złożonych układach takich jak np. zwierciadła Bragga lub mikrowęki optyczne do obliczania profilu pola elektromagnetycznego stosuje się metodę macierzy przejścia w celu powiązania pola elektromagnetycznego dwóch sąsiadujących ośrodków. Polega ona na podzieleniu stosu warstw na serię elementów i opisanie każdego z nich za pomocą macierzy opisującej zachowanie fali w warstwie oraz na granicy ośrodków.

Każdej międzypowierzchni między kolejnymi warstwami tworzącymi strukturę można przypisać macierz:

$$\begin{bmatrix} E_2^+ \\ E_2^- \end{bmatrix} = M \begin{bmatrix} E_1^+ \\ E_1^- \end{bmatrix} \quad (1.9)$$

gdzie M to macierz przejścia, E jest natężeniem pola elektrycznego fali: E_2^+ - padającej, E_2^- - odbitej, E_1^+ - transmitowanej, E_1^- padającej z przeciwnej strony.

Układ złożony z j warstw można wyrazić następująco:

$$M = D_{N,j} \cdot P_j \cdot D_{j,j-1} \cdot P_{j-1} \cdot \dots \cdot D_{2,1} \cdot P_1 \cdot D_{1,0} \quad (1.10)$$

gdzie indeks j symbolizuje kolejne warstwy, a 0 i N otoczenie, w którym znajduje się struktura.

Macierz opisująca propagację w warstwie o numerze j ma postać:

$$P_j = \begin{bmatrix} e^{-i\frac{2\pi}{\lambda} n_j d / \cos(\theta_T)} & 0 \\ 0 & e^{i\frac{2\pi}{\lambda} n_j d / \cos(\theta_T)} \end{bmatrix} \quad (1.11)$$

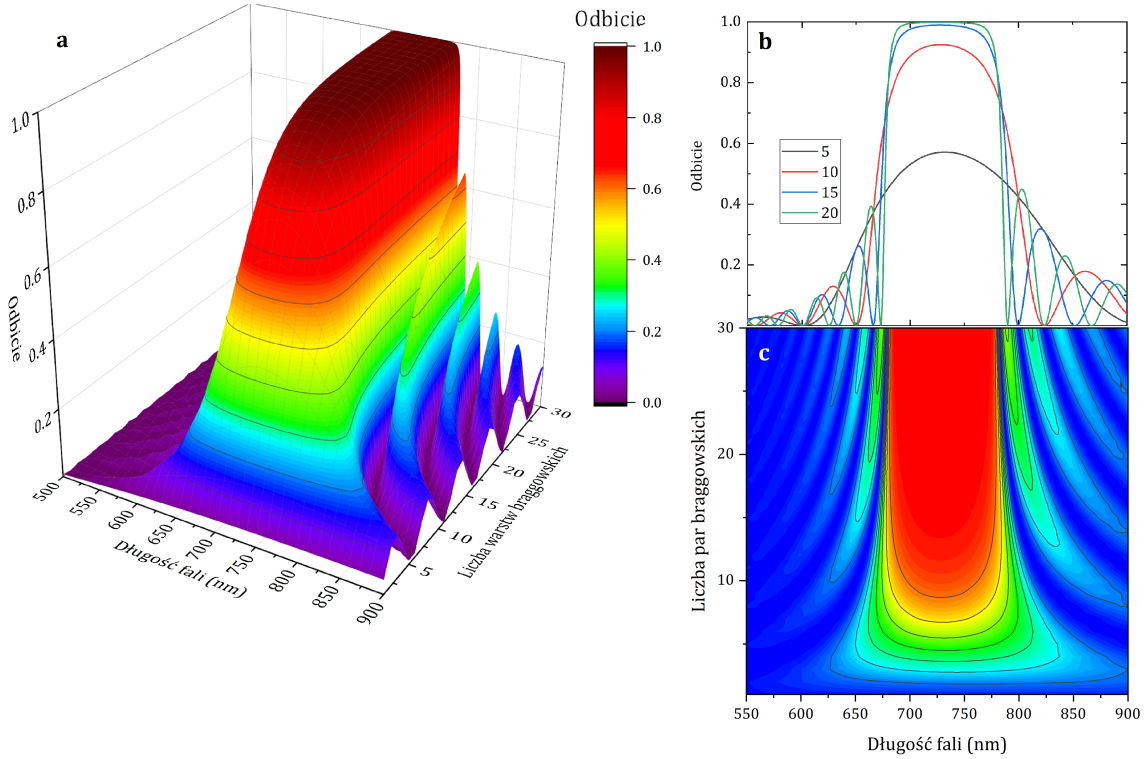
gdzie n_j zespolonym współczynnikiem załamania światła w warstwie o numerze j , λ długością fali światła, θ_T kątem ugięcia światła, a d grubością warstwy.

Dla każdej międzypowierzchni między kolejnymi warstwami tworzącymi strukturę spełnione jest równanie:

$$D_{j,i} = \frac{1}{1+r} \begin{bmatrix} 1 & r \\ r & 1 \end{bmatrix} \quad (1.12)$$

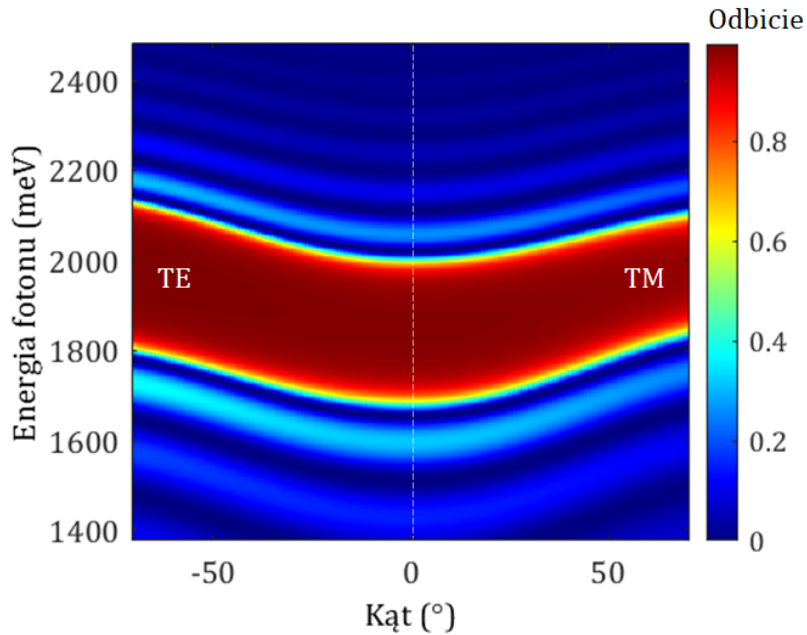
gdzie j, i to kolejne numery warstw, r jest amplitudowym współczynnikiem odbicia na granicy ośrodków wynoszącym $r = r_{TE} = \frac{n_j \cos(\theta_I) - n_i \cos(\theta_T)}{n_i \cos(\theta_T) + n_j \cos(\theta_I)}$ dla polaryzacji TE (w płaszczyźnie padania) oraz $r = r_{TM} = \frac{n_i \cos(\theta_I) - n_j \cos(\theta_T)}{n_i \cos(\theta_I) + n_j \cos(\theta_T)}$ dla polaryzacji TM (w płaszczyźnie prostopadłej do płaszczyzny

padania). Wartość θ_I oznacza kąt padania fali, a θ_T kąt ugięcia. Dla fali padającej prostopadle na próbkę ($\theta_0 = 0$) amplitudowy współczynnik zależy tylko od współczynników załamania warstw.



Rysunek 1.1.4: **a** Wyliczone metodą macierzy przejścia widma odbicia w funkcji liczby par braggowskich. W symulacji przyjęto współczynniki załamania światła $n_L = 2,4$ oraz $n_H = 2,95$, co odpowiada wartościom dla supersieci oraz ZnTe struktury. Mikrownęka oparta na tych materiałach omówiona jest w rozdziale 4. **b** Wybrane widma odbicia prezentujące zmianę kształtu widma w zależności od liczby par braggowskich w zwierciadle **c** Mapa widm odbicia zwierciadła w funkcji liczby par Bragga.

Wyznaczone metodą macierzy przejścia odbicie od struktury zwierciadła Bragga zostało przedstawione na rysunku 1.1.4. Jak wskazuje rysunek 1.1.4 **a**, kilkanaście pierwszych par braggowskich powoduje znaczny wzrost współczynnika odbicia, natomiast dalsze warstwy nie wpływają znacząco na jego maksymalną wartość. Rysunki 1.1.4 **b** i **c** pokazują natomiast, że

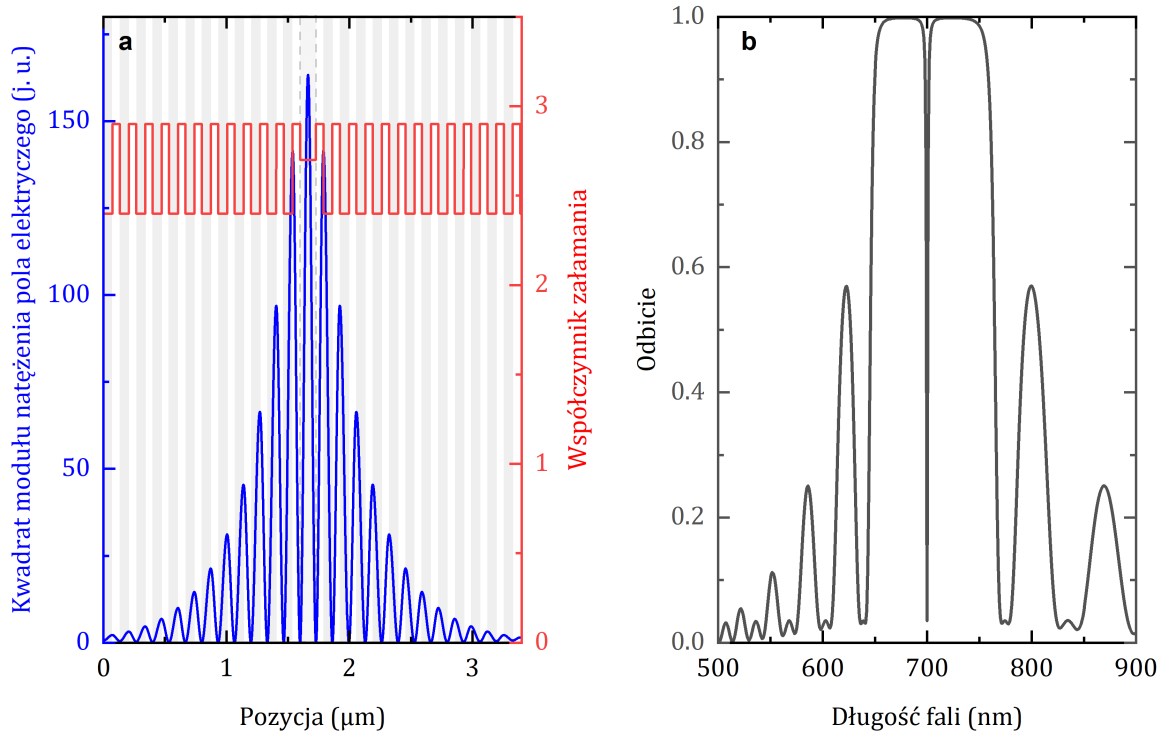


Rysunek 1.1.5: Dyspersja zwierciadła Bragga bazującego na materiałach o współczynnikach załamania $n_L = 2,4$ i $n_H = 2,95$ obliczona dla polaryzacji TE oraz TM. Rachunek został wykonany dla materiałów o rzeczywistych współczynnikach załamania przy zaniedbaniu ich dyspersji.

zwiększanie liczby par wpływa na szerokość spektralną *stopbandu* poprzez tworzenie ostrych granic krawędzi fotonicznej przerwy wzbronionej.

Metoda macierzy przejścia pozwala również na opis dyspersji *stopbandu* zwierciadła Bragga. Rysunek 1.1.5 przedstawia zależność odbicia zwierciadła w funkcji kąta padania światła dla polaryzacji TE i TM.

Przez analogię do warstw metalicznych struktury jednowymiarowego kryształu fotonicznego nazywane są lustrami lub zwierciadłami, lecz charakteryzują je znacząco inne właściwości. Jedną z najważniejszych różnic jest to, że pole elektryczne w warunkach rezonansu ma fazę równą zero dla interfejsu składającego się z warstwy półprzewodnika n_H i wnęki n_c takiej, że $n_H > n_c$, podczas gdy dla lustra metalicznego ta faza równa jest π . W związku z tym, jak



Rysunek 1.1.6: Charakteryzacja mikrownęki bazującej na zwierciadłach Bragga wykonanej z materiałów o współczynnikach załamania $n_L = 2,4$ i $n_H = 2,95$. Materiał wneki ma współczynnik załamania równy $n_c = 2,7$. **a** Zestawienie wykresu zmian współczynnika załamania w strukturze oraz obliczone natężenie pola elektrycznego. **b** Widmo odbicia od struktury mikrownękowej.

pokazano na rysunku 1.1.6 **a** fala stojąca wewnątrz wneki typu Fabry-Pérot utworzonej przez zwierciadła Bragga, wykazuje maksimum pola elektrycznego na granicach wneki. Przykładowe zasymulowane widmo odbicia mikrownęki projektowanej na długość fali $\lambda = 700$ nm pokazano na rysunku 1.1.6 **b**.

Dyspersję fotonu we wnece można przedstawić równaniem:

$$E_C = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_{\perp}^2 + k_{\parallel}^2} \quad (1.13)$$

gdzie E_C to energia fotonu, c prędkość światła, n_c współczynnik załamania materiału wnęki, a $k_\perp$ pęd w wyróżnionym kierunku prostopadłym do płaszczyzny próbki wynoszący $k_\perp = (2\pi n_c)/\lambda_C$. Składowa $k_\parallel$ jest kierunkiem równoległym do płaszczyzny próbki. W powszechnie przyjętym modelu fotony traktowane są jako cząstki bezmasowe. Jednakże w opisie stosowanym w optyce wnękowej foton opisywany jest jako cząstka posiadająca masę efektywną, co można wyjaśnić, bezpośrednio rozważając pęd fotonu w płaszczyźnie wnęki. Dla wartości $k_\parallel \ll k_\perp$ wyrażenie 1.13 można przybliżyć w następujący sposób:

$$E_C(k_\parallel) \approx \frac{\hbar c}{n_c} k_\perp \left(1 + \frac{k_\parallel^2}{2k_\perp^2} \right) = E_C(k_\parallel = 0) + \frac{\hbar^2 k_\parallel^2}{2m_C} \quad (1.14)$$

Równanie 1.14 implikuje paraboliczną krzywą dyspersji fotonu. W związku z tym można przypisać fotonom we wnęce masę efektywną daną równaniem:

$$m_C = \frac{E_C(k_\parallel = 0)}{c^2/n_c^2} \quad (1.15)$$

1.1.2 ODDZIAŁYWANIE ŚWIATŁO-MATERIA

W zależności od siły sprzężenia ośrodka aktywnego i pola elektromagnetycznego go otaczającego można rozróżnić na dwa różne reżimy oddziaływania światło-materia. W reżimie słabego sprzężenia wyemitowany foton ma niewielkie prawdopodobieństwo ponownego zaabsorbowania przez emiter, a energia systemu jest szybko rozpraszana. W tym przypadku emisja jest zgodna ze złotą regułą Fermiego dotyczącą przejścia do wnękowego kontinuum stanów [24]. Wyraża ona prawdopodobieństwo przejścia między dwoma stanami $\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} |M|^2 \rho(\omega)$, gdzie $|M|$ to element macierzowy przejścia między stanami, a $\rho(\omega)$ gęstość modów optycznych w jednostce objętości. Jeśli emitowany foton jest ponownie absorbowany przez ośrodek aktywny, przed opuszczeniem wnęki, układ znajduje się w reżimie silnego sprzężenia. Reżim ten charakteryzuje się ciągłym przekazywaniem energii wzbudzenia między modelem wnęki a medium.

W przypadku dozwolonego przejścia optycznego parametrem opisującym je jest siła

oscylatora, która w przypadku objętościowego materiału wyrażona jest przez:

$$\frac{f_{3D}}{V} = \frac{2}{ME_X} |\theta_{3D}(0)|^2 |\langle \mu_e | \mathbf{p} \cdot \boldsymbol{\varepsilon} | \mu_h \rangle|^2 \quad (1.16)$$

gdzie μ_e i μ_h są amplitudami Blocha elektronu i dziury, V objętością, $\theta_{3D}(0)$ funkcją opisującą względny ruch elektronu i dziury w objętościowym materiale, $\mathbf{p}$ operatorem pędu, a $\boldsymbol{\varepsilon}$ wektorem polaryzacji pola elektromagnetycznego. Siła oscylatora ekscytonu jest miarą prawdopodobieństwa absorpcji i emisji fotonów. W przypadku studni kwantowych wykazuje ona kilkukrotnie wyższą wartość w porównaniu z ekscytonami w objętościowym materiale. W przypadku dwuwymiarowym wyrażenie to przybiera postać:

$$\frac{f_{2D}}{S} = \frac{2}{ME_X} |\theta_{2D}(0)|^2 |\langle \mu_e | \mathbf{p} \cdot \boldsymbol{\varepsilon} | \mu_h \rangle|^2 \int dz |\chi_h(z) \chi_e^*(z)|^2 \quad (1.17)$$

gdzie $\chi_h(z)$ oraz $\chi_e^*(z)$ są funkcjami falowymi elektronu i dziury w studni kwantowej, a S polem powierzchni.

Rozważania dotyczące oddziaływania światła ze zlokalizowanym dipolem w warunkach rezonansu przedstawił E. M. Purcell, który przewidział przyspieszenie spontanicznej emisji atomów umieszczonych we wnęce rezonansowej [25] o czynnik F_P (obecnie nazywany współczynnikiem Purcella):

$$F_P = \frac{\tau_v}{\tau_c} = \frac{3Q}{4\pi^2 V} \left(\frac{\lambda}{n} \right)^3 \quad (1.18)$$

gdzie τ_v oznacza średni czas emisji w próżni, a τ_c czas emisji we wnęce wyrażany równaniem $\tau_c = \frac{L_c n_c (1-R)}{c\sqrt{R}}$ [26]. Wartość Q jest dobrocią wnęki, λ - długością fali światła a n współczynnikiem załamania materiału wypełniającego wnękę. Efektywna objętość modu optycznego dana jest równaniem $V = \int \int \int dV \frac{|E|^2}{|E_{max}|^2}$, gdzie E jest natężeniem pola elektrycznego w próżni, a E_{max} maksymalną jego wartość. Współczynnik Purcella w ogólności opisuje lokalne wzmocnienie pola elektromagnetycznego w wyniku oddziaływania z emitorem.

1.1.3 POLARYTONY EKSCYTONOWE

Oddziaływaniu kwazicząstek w kryształach takich jak fonon, ekscyton, czy plazmon z promieniowaniem elektromagnetycznym w warunkach silnego sprzężenia towarzyszy powstanie sprzężonego modu nazywanego polarytonem. W niniejszej pracy uwaga została skupiona tylko na jednym typie polarytonów, w którym ową kwazicząstką jest ekscyton. W dalszej części pracy określenie *polaryton* będzie używane do opisu polarytonu ekscytonowego. Ekscytony istnieją w kryształach przez czas rzędu 1 ps-1 ns, a następnie rekombinują, generując foton. Jeśli nie ulegnie on rozproszeniu na niedoskonałościach struktury, może on zostać ponownie zaabsorbowany przez materiał półprzewodnika, ponownie generując ekscyton. Polarytony ekscytonowe powstające w wyniku silnego sprzężenia światło-materia między ekscytonami i fotonami wewnątrz półprzewodnika dziedziczą zarówno właściwości ekscytonowe, jak i fotonowe. [11, 27] Ze względu na komponenty posiadające całkowity spin również powstałe polarytony wykazują naturę bozonową, więc można oczekiwać, że dla odpowiedniej ich gęstości będą one ulegać kondensacji. Część ekscytonowa tych hybrydowych kwazicząstek jest odpowiedzialna za wydajne oddziaływanie polarytonów [28, 29], które w wyniku rozpraszania parametrycznego może prowadzić do kondensacji polarytonów, [12, 15, 30] podobnie jak w przypadku kondensatu na ultrazimnych atomach [7]. Równocześnie wkład fotonowy zapewnia małą masę efektywną ok. 10^{-4} masy elektronu i decyduje o tym, że eksperymentalne uzyskanie kondensatu polarytonów ekscytonowych jest znacznie łatwiejsze niż w przypadku samych ekscytonów oraz w układach wykorzystujących ultrazimne atomy. Liczne prace eksperymentalne i teoretyczne w dziedzinie silnego oddziaływania światła-materia pozwoliły dobrze zrozumieć podstawowe właściwości rządzące polarytonami, takie jak ich dyspersja [31], czas życia [32] czy dynamika relaksacji [33, 34].

Początkowo systemy, w których badano efekty polarytonowe, ograniczały się głównie do objętościowych kryształów CuCl [35] i CdS [36], w których brak możliwości zmiany odstrojenia ekscytonu i modu optycznego znacznie ograniczał ich użyteczność i zakres badanych zjawisk. Zastosowanie omówionych wcześniej studni kwantowych umożliwiło kontrolę energii ekscytonu, jednak dopiero wprowadzenie wnęk optycznych pozwoliło na precyzyjny wybór energii fotonów biorących udziału w tworzeniu polarytonu, a w konsekwencji kontrolę jego składu przez wybór odstrojenia między ekscytonem i modelem optycznym.

1.2 SILNE SPRZĘŻENIE ŚWIATŁO-MATERIA W MIKROWNĘCE OPTYCZNEJ Z EMITEREM

Emiter w strukturze mikrownękowej można umieścić precyzyjnie w regionie wykazującym maksimum pola elektrycznego, co umożliwia maksymalizację siły oddziaływania. Wysoka jakość strukturalna luster jest kluczowa dla obserwacji efektów oddziaływania światło-materia, ponieważ jeśli fotony emitowane w wyniku rekombinacji ekscytonów rozpraszają się na niedoskonałościach układu warstw, to niemożliwe jest ich ponowne zaabsorbowanie przez studnię kwantową. Wysoki współczynnik dobroci wnęki optycznej pozwala na wydajniejsze wiązanie fotonów i w związku z tym zwiększanie ich czasu życia w mikrownęcie.

W silnym sprzężeniu stany własne układu nie są już indywidualnymi stanami ekscytonu lub fotonu. W wyniku oddziaływania stanów powstają nowe stany górnej oraz dolnej gałęzi polarytonowej będące superpozycją fotonów i ekscytonów opisywanych przez półklasyczny model dwóch sprzężonych oscylatorów harmoniczych. W tym przybliżeniu można założyć, że ekscyton anihiluje, emitując foton, a następnie ten foton jest ponownie zaabsorbowany przez ośrodek aktywny, co powoduje wykreowanie ekscytonu o niezmięnionej energii. Model ten bez uwzględnienia tłumienia oscylatorów dla stanu $1s$ ekscytonu można opisać za pomocą Hamiltonianu w formalizmie drugiej kwantyzacji składającym się z trzech członów:

$$H = H_X + H_C + H_{XC}, \quad (1.19)$$

w którym człon H_X odpowiedzialny jest za opis wkładu ekscytonowego, H_C wkładu fotonowego, natomiast H_{XC} opisuje oddziaływanie między tymi stanami.

Rozwinięcie tych wyrażeń wygląda następująco:

$$H_X = \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} E_X(k_{\parallel}) b_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} b_{\mathbf{k}_{\parallel}} \quad (1.20)$$

gdzie $b_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger}$ oraz $b_{\mathbf{k}_{\parallel}}$ są operatorami kreacji i anihilacji ekscytonu. $E_X(k_{\parallel})$ zależnością reprezentującą paraboliczną dyspersję nieoddziałującego stanu ekscytonu wyrażoną równaniem 1.3.

Analogiczne wyrażenie można napisać dla części fotonowej:

$$H_C = \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} E_C(k_{\parallel}) a_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}_{\parallel}} \quad (1.21)$$

gdzie $a_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger}$ oraz $a_{\mathbf{k}_{\parallel}}$ są operatorami kreacji i anihilacji fotonu. Natomiast $E_C(k_{\parallel})$ zależnością reprezentującą paraboliczną dyspersję nieoddziałującego modu wnękowego wyrażającą się równaniem 1.14: Ostatni człon Hamiltonianu reprezentuje liniowe oddziaływanie ekscyton-foton:

$$H_{XC} = \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \hbar g_{0,\mathbf{k}_{\parallel}} \left(b_{\mathbf{k}_{\parallel}} a_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} + b_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}_{\parallel}} \right) \quad (1.22)$$

gdzie $\hbar g_{0,\mathbf{k}_{\parallel}}$ jest miarą energii tego sprzężenia wyrażoną przez:

$$g_{0,\mathbf{k}_{\parallel}} = \sqrt{\frac{2c\gamma_{X,0}}{n_c L_{eff}}} \propto \sqrt{\frac{f}{L_{eff}}} \quad (1.23)$$

W równaniu tym c to prędkość światła, $\gamma_{X,0}$ jest prędkością radiacyjnego zaniku ekscytonu bez otoczenia fotonicznego, f siłą oscylatora ekscytonu. W przypadku wnęki utworzonej przez zwierciadła Bragga efektywna długość wnęki wyrażona jest przez $L_{eff} = L_C + 2L_{DBR}$, gdzie L_{DBR} jest głębokością wnikania fali elektromagnetycznej w zwierciadła i jest wyrażona $L_{DBR} = L_C + 2 \frac{\lambda_0}{2n_C[n_H n_L / (n_H - n_L)]}$ [23], przy założeniu, że n_C to współczynnik załamania materiału wnęki dla długości fali λ_0 , a n_H i n_L to współczynniki załamania materiałów tworzących pary braggowskie. Rozważając małe wartości wektora falowego, można traktować wielkość g_0 jako stałą wartość $g_{0,\mathbf{k}_{\parallel}} = g_0$, co znacznie upraszcza rozważania i nie wprowadza dużego błędu w obliczeniach energii poziomów polarytonowych. Wartość g_0 zależy od liczby studni kwantowych znajdujących się w mikrowniecie N_{QW} i jest proporcjonalna do $\sqrt{N_{QW}}$ [23]. Jednakże duża wartość L_C prowadzi do znacznego zmniejszenia siły sprzężenia g_0 [37].

W rozważaniach sprzężonych układów stanów ekscytonowych i fotonowych korzystne jest stosowanie zapisu macierzowego Hamiltonianu, który w przypadku układu dwupoziomowego

będzie wyglądał następująco:

$$M(k_{\parallel}) = \begin{pmatrix} E_X(k_{\parallel}) & \hbar g_0 \\ \hbar g_0 & E_C(k_{\parallel}) \end{pmatrix} \quad (1.24)$$

Diagonalizacja Hamiltonianu 1.24 prowadzi do uzyskania hybrydowych poziomów energetycznych opisywanych za pomocą wyrażenia:

$$H = E_{LP}(k_{\parallel}) p_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} p_{\mathbf{k}_{\parallel}} + E_{UP}(k_{\parallel}) q_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} q_{\mathbf{k}_{\parallel}} \quad (1.25)$$

Operatory $p_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger}$ i $q_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger}$ wiążą się z operatorami kreacji fotonu $a_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger}$ i kreacji ekscytynu $b_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger}$ relacją:

$$\begin{pmatrix} p_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} \\ q_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C(k_{\parallel}) & X(k_{\parallel}) \\ X(k_{\parallel}) & C(k_{\parallel}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} \\ b_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} \end{pmatrix} \quad (1.26)$$

gdzie $X(k_{\parallel})$ i $C(k_{\parallel})$ oznaczają tzw. współczynniki Hopfielda.

Stany polarytonowe mogą być opisane za pomocą współczynników Hopfielda, które charakteryzują wkład niezwiązanych stanów do nowych stanów własnych polarytonów. W związku z tym dyspersję gałęzi polarytonowej można przedstawić za pomocą wyrażenia:

$$E(k_{\parallel}) = X(k_{\parallel}) E_X(k_{\parallel}) + C(k_{\parallel}) E_C(k_{\parallel}) \quad (1.27)$$

gdzie wartość współczynnika $X(k_{\parallel})$ reprezentuje wkład ekscytynowy do gałęzi polarytonowej, a $C(k_{\parallel})$ wkład fotonowy. Wyrażają się one w następujący sposób:

$$X(k_{\parallel}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(1 + \frac{E_C(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel})}{\sqrt{[E_C(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel})]^2 + (2\hbar g_0)^2}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1.28)$$

$$C(k_{\parallel}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(1 - \frac{E_C(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel})}{\sqrt{[E_C(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel})]^2 + (2\hbar g_0)^2}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1.29)$$

i spełniają zależność:

$$|X(k_{\parallel})|^2 + |C(k_{\parallel})|^2 = 1 \quad (1.30)$$

Współczynniki Hopfielda wiążą masę polarytonu z masami ekscytonu i fotonu we wnęce następującymi wyrażeniami:

$$\frac{1}{m_{LP}} = \frac{|X(k_{\parallel} = 0)|^2}{m_X} + \frac{|C(k_{\parallel} = 0)|^2}{m_C}, \quad \frac{1}{m_{UP}} = \frac{|C(k_{\parallel} = 0)|^2}{m_X} + \frac{|X(k_{\parallel} = 0)|^2}{m_C} \quad (1.31)$$

gdzie m_{UP} i m_{LP} masy polarytonów skalowane przez współczynniki Hopfielda.

Poziomy energetyczne E_{UP} i E_{LP} zawierające wkład ekscytonowy i fotonowy wykazują nieparaboliczną zależność dyspersyjną nazywaną gałęziami polarytonowymi i opisywane są wyrażeniami:

$$E_{UP,LP}(k_{\parallel}) = \frac{1}{2} \left(E_C(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel}) \pm \sqrt{[E_C(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel})]^2 + (2\hbar g_0)^2} \right) \quad (1.32)$$

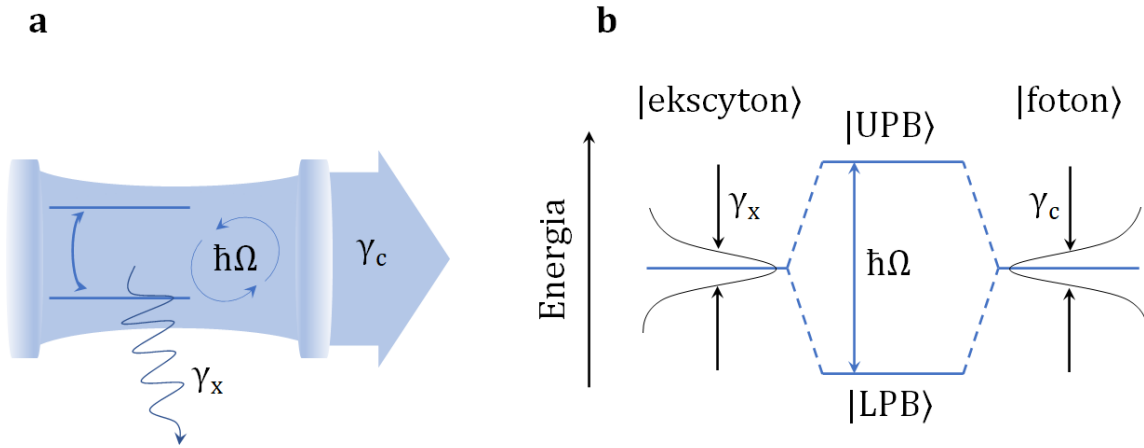
Zgodnie z opisem przedstawionym za pomocą równania 1.32, gdy rozważany jest nieskończony kryształ, w którym nie występują rozproszenia oraz inne straty między ekscytonem, a fotonem zawsze występuje silne sprzężenie. W sytuacji rzeczywistej każdy układ posiada różnego typu straty wynikające głównie z niedoskonałości strukturalnych, domieszek oraz innych niejednorodności, które wpływają na rozproszenia fotonów lub ekscytonów, jak również z rekombinacji niepromienistej. Dla większości systemów materiałowych, a w szczególności dla materiałów grup II-VI uzyskanie silnego sprzężenia w strukturze wymaga dużego wysiłku technologicznego. W tym celu stosuje się wysokiej jakości lustra typu braggowskiego pozwalające na zwiększenie intensywności pola elektrycznego w rejonie studni kwantowej. Dodatkowo optymalizacja i kontrola *in-situ* wzrostu struktury pozwala na redukcję nieuporządkowania w sieci krystalicznej, które mogłoby wpływać na rozproszenia ekscytonów studni kwantowych lub fotonów mikrownękowych. Skończony czas życia części ekscytonowej i fotonowej polarytonu można włączyć do obliczeń, wprowadzając do wyrażania 1.24 podstawienie $E_X \rightarrow E_X - i\hbar\gamma_X$

oraz $E_C \rightarrow E_C - i\hbar\gamma_C$, gdzie do rzeczywistych wyrazów przedstawiających energię ekscytynu i dziury dodano urojone wyrażenia odpowiedzialne za tłumienie oscylatorów ekscytynu oraz fotonu w postaci γ_X i γ_C . W zastosowanej urojonej części włączane są do równania wszystkie straty pochodzące od rozproszeń fotonów lub ekscytynów oraz rekombinacji niepromienistej ekscytynów.

Po podstawieniu wyrażenie wygląda następująco:

$$M = \begin{pmatrix} E_X(k_{\parallel}) - i\hbar\gamma_X & \hbar g_0 \\ \hbar g_0 & E_C(k_{\parallel}) - i\hbar\gamma_C \end{pmatrix} \quad (1.33)$$

Przyjęty model schematycznie obrazuje rysunek 1.2.1 **a**. Prowadzi do modyfikacji wyrażen reprezentujących zależność dyspersyjną dolnej i górnej gałęzi polarytonowej.



Rysunek 1.2.1: **a** Schemat obrazujący założenia przyjęte w modelu dwóch tłumionych oscylatorów. Czas życia zarówno ekscytynów jak i fotonów jest ograniczony przez rozproszenia opisane za pomocą stałych γ_X i γ_C . **b** Schemat niesprzężonych (poziom ekscytonowy, mod wewnętrzny) i sprzężonych (dolna gałąź polarytonowa (LPB), górna gałąź polarytonowa (UPB)). Jeśli szerokość linii γ_X i γ_C spełnia zależność $\hbar g_0 \gg \gamma_C, \gamma_X$ możliwy jest do zaobserwowania reżim silnego sprzężenia.

$$E_{UP,LP}(k_{\parallel}) = \frac{1}{2}(E_X(k_{\parallel}) + E_C(k_{\parallel}) - i\hbar\gamma_X(k_{\parallel}) - i\hbar\gamma_C(k_{\parallel})) \pm \sqrt{[E_C(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel}) - i[\hbar\gamma_C(k_{\parallel}) - \hbar\gamma_X(k_{\parallel})]]^2 + (2\hbar g_0)^2} \quad (1.34)$$

W przypadku rezonansowym gdzie odstrojenie $\delta = 0$ dla wektora falowego $k = 0$ zachodzi równość $E_C = E_X$ a rzeczywista wartość wyrażenia znajdującego się pod pierwiastkiem osiąga minimalną wartość. Separacja energii między poziomami energetycznymi nazywana jest rozszczepieniem Rabiego Ω i wynosi:

$$\hbar\Omega = 2\sqrt{(\hbar g_0)^2 - \frac{\hbar^2}{4}[\gamma_C - \gamma_X]^2} \quad (1.35)$$

W zależności od wartości g_0 można rozróżnić dwa zakresy sprzężenia.

W reżimie słabego sprzężenia, w którym Ω jest wartością urojoną zachodzi nierówność

$$(2g_0)^2 < (\gamma_C - \gamma_X)^2 \quad (1.36)$$

W przypadku słabego sprzężenia obecność otoczenia fotonicznego w postaci mikrownęki modyfikuje radiacyjną szybkość zaniku ekscytynu [23], ale nie jest obserwowane rozszczepienie poziomów energetycznych.

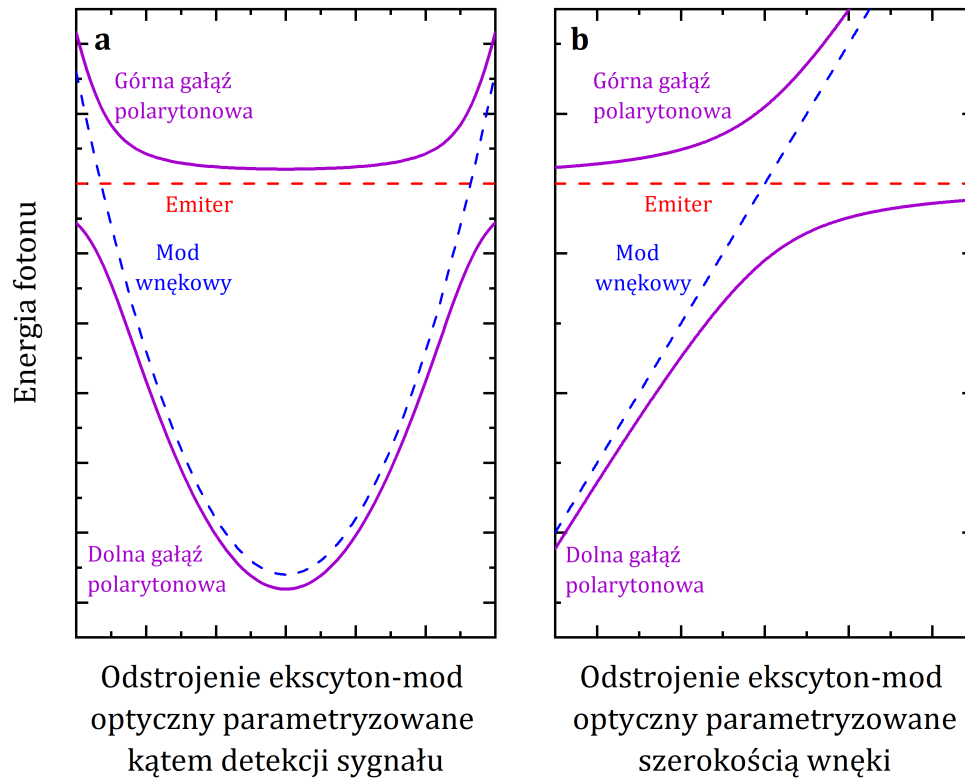
Natomiast reżim, w którym Ω jest wartością rzeczywistą i spełniona jest nierówność:

$$(2g_0)^2 > (\gamma_C - \gamma_X)^2 \quad (1.37)$$

nazywany jest reżimem silnego sprzężenia. W eksperymencie przyjmuje się, że warunki silnego sprzężenia można zaobserwować jeśli $g_0 \gg \gamma_C, \gamma_X$ (rysunek 1.2.1 **b**). W takiej sytuacji działa przybliżenie $\Omega \approx 2g_0$.

W reżimie silnego sprzężenia następuje odwracalny transfer energii między ekscytynem a fotonem, co prowadzi do powstania hybrydowych kwazicząstek - polarytonów. Komponent fotonowy polarytonów ekscytynowych pozwala na łatwą manipulację

właściwościami polarytonów w wyniku zastosowania m.in. struktur fotonicznych, podczas gdy składnik ekscytonowy, jest odpowiedzialny za nieliniowy charakter sprzężenia światła i materii oraz daje polarytonom zdolność wydajnego wzajemnego oddziaływania, jak również interakcji z otoczeniem [29, 38]. Na rysunku 1.2.2 przedstawiono symulację dwóch typowych pomiarów wykonywanych w celu charakterystyki układu polarytonowego.



Rysunek 1.2.2: Symulacja dwóch typowych pomiarów pokazujących efekt silnego sprzężenia w postaci odpychania linii spektralnych (*anticrossing*). **a** emisji rozdzielonej kątowo, w której odstrojenie ekscyton-mod optyczny parametryzowane jest energią modu optycznego zmieniającą się w funkcji wektora falowego. Typowo, pomiar w funkcji kąta detekcji sygnału. **b** emisji rozdzielonej przestrzennie, w której odstrojenie ekscyton-mod optyczny parametryzowane jest energią modu optycznego zmieniającą wraz z szerokością mikrownęki. Typowo, pomiar w funkcji położenia na próbce zmieniającego się wzdłuż gradientu szerokości mikrownęki.

Rysunek 1.2.2 **a** przedstawia nieparaboliczne gałęzie polarytonowe powstałe w wyniku odepchnięcia linii ekscytonowej oraz modu fotonowego w silnym sprzężeniu światło-materia. Warto zaznaczyć, że w typowym pomiarze krzywej dyspersji rejestrowane jest widmo rozdzielone kątowo, które wiąże z zależnością pędową następująca relacja:

$$k_{\parallel} = n_c \frac{2\pi}{\lambda_c} \operatorname{tg} \left[\sin^{-1} \left(\frac{\sin \theta}{n_c} \right) \right] \approx \frac{2\pi}{\lambda_c} \theta \quad (1.38)$$

przy założeniu, że $k_{\parallel} \ll k_{\perp}$.

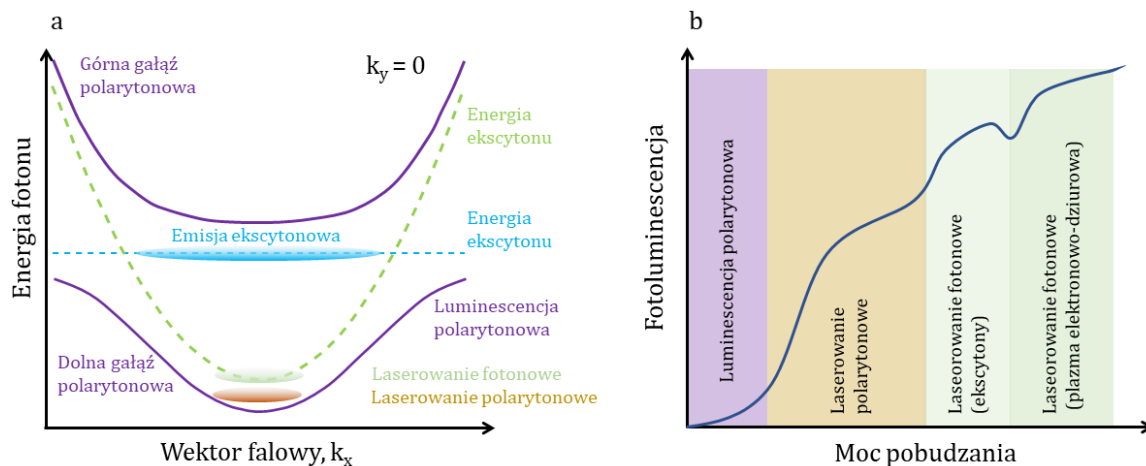
Rysunek 1.2.2 **b** przedstawia *anticrossing* modu wnękowego z energią ekscytanu. Próbki mikrownękowe typowo hodowane w konfiguracji klinowej pozwalają na bezpośrednie potwierdzenie warunków silnego sprzężenia za pomocą pomiaru widma emisji lub odbicia w funkcji położenia na próbce (czyli grubości mikrownęki).

1.3 EFEKTY LASEROWANIA Z MIKROWNĘK PÓŁPRZEWODNIKOWYCH

W ogólności w strukturach mikrownękowych bazujących na półprzewodnikach można zaobserwować trzy typy laserowania. Każdy z zakresów charakteryzuje się innym mechanizmem uzyskiwania emisji koherentnej. Efektywność emisji jest definiowana przez współczynnik β będący stosunkiem prędkości emisji spontanicznej modu laseującego τ_l^{-1} do całkowitej spontanicznej emisji τ_c^{-1} :

$$\beta = \frac{\tau_l^{-1}}{\tau_c^{-1}} \quad (1.39)$$

Schematyczny przebieg zależności intensywności emisji w funkcji mocy pobudzenia został pokazany na rysunku 1.3.1. W następnych podrozdziałach zostaną omówione poszczególne typy laserowania.



Rysunek 1.3.1: **a** Różne mechanizmy emisji możliwe do uzyskania z układu mikrownęki ze studnią kwantową. Emisja ze stanu ekscytonowego i fotonowego są charakterystyczne dla reżimu słabego sprzężenia. Emisja ze stanów polarytonów zachodzi w reżimie silnego sprzężenia. **b** Zależność intensywności emisji (skala logarytmiczna) od mocy pobudzenia (skala logarytmiczna) z trzema progami laserowania reprezentującymi trzy różne mechanizmy odpowiedzialne za emisję koherentną: laserowanie polarytonowe, laserowanie fotonowe na ekscytonach oraz laserowanie fotonowe na plazmie elektronowo-dziurowej. Spadek intensywności między dwoma reżimami laserowania fotonowego wynika z przejścia Motta, w którym następuje dysocjacja ekscytynu.

1.4 KONDENSACJA BOSEGO-EINSTEINA POLARYTONÓW I LASEROWANIE POLARYTONOWE

W poprzednich podrozdziałach zostały przedstawione warunki niezbędne do uzyskania silnego sprzężenia światło-materia w układzie mikrownękowym. Polaryton będący hybrydową cząstką o spinie całkowitym złożoną z komponentów fermionowych zachowuje swoją bozonową naturę, jeśli gęstość kwazicząstek jest relatywnie mała. Bozony, charakteryzujące się symetryczną funkcją falową, nie spełniają zakazu Pauliego, dzięki czemu mogą zajmować ten sam stan kwantowy, co prowadzi do zjawisk takich jak stymulowane rozpraszanie do stanu podstawowego i kondensacja Bosego-Einsteina.

W oryginalnych pracach Bosego i Einsteina na temat kondensacji cząstek rozważany

był układ nieoddziałujących bozonów w stanie równowagi termodynamicznej [5, 6]. Polarytony wyróżniają się spośród układów, w których obserwowano kondensację. Masa efektywna polarytonów jest o osiem rzędów wielkości mniejsza niż w przypadku atomów, co prowadzi do znacznie wyższej temperatury krytycznej i umożliwia kondensację polarytonów nawet w temperaturze pokojowej. Ponadto czas termalizacji polarytonów do stanu podstawowego jest porównywalny z czasem ich życia, co oznacza, że w przypadku polarytonów stan równowagi termicznej jest trudniejszy do osiągnięcia niż w układach atomowych. Polarytony mikrownękowe reprezentują układ otwarty, w którym kwazicząstki kreowane przez pompowanie optyczne oddziałują ze sobą i relaksują do stanu podstawowego. Jednocześnie polarytony, tracone są w wyniku rozproszeń lub zaniku promienistego. W związku z tym, aby utrzymać stan równowagi, układ musi być ciągle zasilany przez rezerwuar kwazicząstek kreowany np. w wyniku nierezonansowego pobudzenia.

W mikrownękach półprzewodnikowych niezdegenerowane rozpraszanie parametryczne stymulujące kondensację staje się wydajne, gdy nierezonansowo wygenerowana wysoka gęstość polarytonów zgromadzi się w regionie krzywej dyspersji nazywanym *bottleneck* lub gdy pobudzenie rezonansowe jest dostosowane do tzw. kąta magicznego. [39] Bozonowa natura polarytonów umożliwia im zajęcie jednego stanu kwantowego. Stymulowane rozpraszanie parametryczne do stanu końcowego prowadzi do tak fascynujących efektów, jak kondensacja polarytonów Bosego-Einsteina [12, 30], osiągalnych przy bardzo niskiej mocy wzbudzenia i wyższej temperaturze niż w układach zimnoatomowych. [7] Właściwości wytworzonego kondensatu takie, jak makroskopowe obsadzenie stanu podstawowego oraz wysoka długość koherencji pozostają zbliżone do właściwości kondensatu Bosego-Einsteina w stanie równowagi termodynamicznej znanego z prac dotyczących ultrazimnych gazów. Analogicznie do tradycyjnego lasera, emisję powstającą z kondensatu określa się terminem laserowania polarytonowego. [14, 15]

W mikrownękach półprzewodnikowych ze studniami kwantowymi obserwuje się przejście fazowe od klasycznego termicznego stanu mieszanego do kwantowo-mechanicznego stanu czystego polarytonów ekscytonowych. Eksperymentalnym potwierdzeniem tego efektu jest obserwacja nieliniowego zachowania progowego w funkcji mocy pobudzenia, przy jednoczesnej obserwacji polarytonowej zależności dyspersyjnej powyżej progu. Światło

emitowane z kondensatu polarytonów ma cechy zbliżone do emisji konwencjonalnego lasera, ponieważ polarytony zasilające kondensat dziedziczą spójność fazową i energetyczną ze skondensowanych polarytonów.

W związku z właściwościami, takimi jak nieliniowe zachowanie progowe, czy spójność fazowa, emisja z kondensatu polarytonów, nazywana jest laserowaniem polarytonowym lub laserowaniem bez inwersji obsadzeń. [14, 15, 40] Drugie z tych określeń wyraźnie podkreśla podstawową różnicę między laserem konwencjonalnym a laserem polarytonowym, która pozwala laserom opartym na wymuszonym rozpraszaniu polarytonów na osiągnięcie bardzo niskiego progu laserowania [41–43]. Kondensaty polarytonów były przedmiotem intensywnych badań ze względu na unikalne efekty takie jak nadciekłość, [44], oscylacje Josephsona [45, 46] czy optyczny spinowy efekt Halla. [47–49]

W zależności od mocy pobudzania można wyróżnić dwa szczególne zakresy pracy polarytonowych systemów mikrownękowych. Przy niskiej mocy pobudzania polarytony rekombinują promieniście głównie w regionie *bottleneck* dolnej gałęzi polarytonowej, dając w przybliżeniu liniową zależność intensywności emisji od mocy pobudzania. Wraz ze wzrostem mocy pobudzania zwiększa się gęstość polarytonów oraz ich rozpraszanie mediowane przez ekscytonową część polarytonów. W wyniku zapełniania stanu podstawowego znajdującego się w minimum energetycznym dolnej gałęzi polarytonowej bozonowa natura polarytonów prowadzi do nieliniowej odpowiedzi układu z widocznym zachowaniem progowym. Wydajność rozpraszania do stanu podstawowego jest proporcjonalna do $1 + N$, gdzie N jest populacją stanu końcowego. Zależność ta jest charakterystyczna dla statystyki bozonów i prowadzi do kondensacji Bosego-Einsteina, którą w eksperymencie można zaobserwować jako dominujące obsadzenie najniższego stanu energetycznego.

Podstawowym procesem zachodzącym w laserach polarytonowych jest stymulowane rozpraszanie parametryczne do stanu końcowego. W przypadku omawianego układu składającego się z dwóch gałęzi polarytonowych jest to jedyny przykład procesu parametrycznego możliwy do zaobserwowania. Uzyskanie innych typów rozpraszania parametrycznego wymagałoby wprowadzenia dodatkowych poziomów energetycznych np. w postaci dodatkowych gałęzi polarytonowych. Problem ten zostanie omówiony w dalszej części tego rozdziału.

Za pojawienie się nieliniowości emisji odpowiada rozpraszanie polarytonów do stanu końcowego i dominacja obsadzenia w niższym stanie energetycznym w $k = 0$ na dolnej gałęzi polarytonowej. W wyniku obsadzenia jednego stanu przez dużą liczbę cząstek następują niezaniedbywalne oddziaływania polaryton-polaryton, czego obserwowanym eksperymentalnie skutkiem jest przesunięcie ku wyższym energiom sygnału pochodzącego z kondensatu. Gdy populacja polarytonów, a co za tym idzie energia wzajemnych oddziaływań wzrośnie dostatecznie dużo, przesunięcie przekracza szerokość linii spektralnej polarytonu i może być wyznaczone w pomiarze.

Głównym efektem interakcji będzie lokalne przesunięcie w kierunku niebieskim o wartości $g * n$ dyspersji polarytonów, gdzie n jest lokalną gęstością polarytonów, a g stałą opisującą oddziaływania polaryton-polaryton. Wraz z uzyskaniem wartości progowej można zaobserwować nagle zwężenie linii emisyjnej, co jest oznaką wzrostu spójności w układzie. W przeciwieństwie do lasera fotonowego do uzyskania koherentnej emisji nie jest wymagana inwersja obsadzeń, w związku z tym wartość progowa mocy może być o rzędy wielkości niższa w porównaniu do konwencjonalnego lasera fotonowego na ciele stałym. W granicy wysokich mocy pobudzania, wzrost dekoherencji wywołany wysoką gęstością ekscytonów powoduje zmniejszenie siły sprzężenia ekscytonu i fotonu oraz utratę warunków silnego sprzęgania, a w konsekwencji przejście z lasera polarytonowego do lasera fotonowego.

OPIS EMISJI Z KONDENSATU POLARYTONÓW EKSCYTONOWYCH

Powszechnie stosowanym opisem kondensatów Bosego-Einsteina jest równanie Grossa-Pitajewskiego [50].

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(r, t)}{\partial t} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m_{LP}} + g|\Psi(r, t)|^2 \right) \Psi(r, t) \quad (1.40)$$

gdzie g reprezentuje oddziaływania cząstek w kondensacie.

Jednakże, jak zostało wskazane w poprzednim podrozdziale, istnieje zasadnicza różnica między kondensatami atomowymi i kondensatami polarytonów. W przypadku dynamicznej równowagi opartej na jednoczesnym rozpraszaniu kondensatu wynikającego z wyciekania części

fotonowej i pompowaniu optycznym opis kondensatu polarytonów można przedstawić w ramach modelu pola średniego, który redukuje wielociałowy charakter Hamiltonianu. Zabieg ten pozwala na opis makroskopowy funkcji falowej nierównowagowego kondensatu [51]. Równanie Grossa-Pitajewskiego opisujące rezonansowo pobudzany kondensat polarytonów przyjmuje formę:

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(r, t)}{\partial t} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m_{LP}} + g|\Psi(r, t)|^2 + \frac{i\hbar}{2} [P(r, t) - \gamma_{LP}] \right) \Psi(r, t) \quad (1.41)$$

gdzie m_{LP} to masa polarytonu, g reprezentuje oddziaływania polaryton-polaryton w kondensacie, γ_{LP} jest szybkością rozpraszania polarytonów z kondensatu utworzonego na dolnej gałęzi polarytonowej, a $P(r, t)$ jest mocą pobudzania.

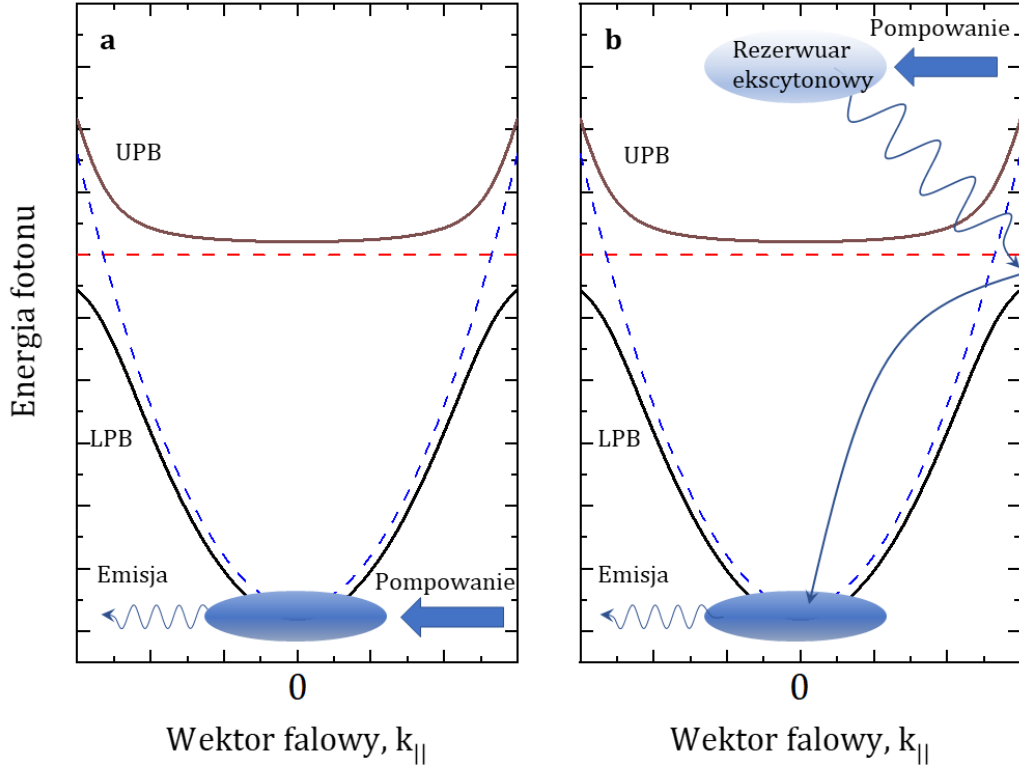
W przypadku rozrzedzonego gazu Bosego makroskopowa funkcja falowa opisująca nierównowagowy kondensat dana jest zależnością $\Psi(r, t) = \langle \hat{\Psi}(r, t) \rangle$. Operator $\hat{\Psi}(r, t)$ wyrażony jest przez:

$$\hat{\Psi}(r, t) = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{k_{\parallel}} \hat{p}_{k_{\parallel}} e^{ik_{\parallel} r} \quad (1.42)$$

gdzie $\hat{p}_{k_{\parallel}}$ jest operatorem anihilacji polarytonu na dolnej gałęzi polarytonowej z wektorem falowym $k_{\parallel}$.

Pobudzanie rezonansowe niesie ze sobą pewne utrudnienia eksperymentalne związane z silnym sygnałem odbitym oraz rozproszonym pochodzącym z lasera pobudzającego w energii odpowiadającej sygnałowi mierzonemu w eksperymencie. Alternatywnym podejściem jest pompowanie nierezonansowe, w którym uzyskuje się separację spektralną pompy i sygnału, a kondensat generowany jest pośrednio przez rezerwuar ekscytonów utworzony w wysokiej energii i pędzie. Ekscytony w wyniku oddziaływania z fononami relaksują następnie do dolnej gałęzi polarytonowej. Po osiągnięciu regionu *bottleneck* w wyniku oddziaływań polaryton-polaryton osiągają minimum krzywej dyspersji. Porównanie pobudzania rezonansowego i nierezonansowego zostało przedstawione na rysunku 1.4.1.

W przypadku opisu właściwości emisyjnych kondensatów polarytonowych generowanych w wyniku pobudzania nierezonansowego, którym poświęcono niniejszą pracę,



Rysunek 1.4.1: Schemat kreowania kondensatu za pomocą pompowania **a** rezonansowego i **b** nierezonansowego.

funkcja falowa opisywana jest otwarto-dysypatywnym równaniem Grossa-Pitajewskiego [52]. Podstawą tego równania jest nieliniowe równanie Schrödingera sprzężone z rezerwuarem ekscytonów [51, 53]:

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(r, t)}{\partial t} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m_{LP}} + g|\Psi(r, t)|^2 + g_R n_R(r, t) + \frac{i\hbar}{2} [R_R n(r, t) - \gamma_{LP}] \right) \Psi(r, t) \quad (1.43)$$

gdzie g reprezentuje oddziaływania polaryton-polaryton w kondensacie, g_R reprezentuje oddziaływania kondensatu polarytonów z rezerwuarem, R_R jest szybkością transferu ekscytonów z rezerwuaru do gałęzi polarytonowej, γ_{LP} jest szybkością dysypacji polarytonów, a $n_R(r, t)$,

$n(r, t)$ opisują odpowiednio populację rezerwuaru oraz kondensatu.

Rezerwar opisany jest równaniem:

$$\frac{\partial n_R}{\partial t} = P(r, t) - \gamma_R n(r, t) - R_R n(r, t) |\Psi(r, t)|^2 \quad (1.44)$$

gdzie γ_R jest czasem życia ekscytonów w rezerwarze, $P(r, t)$ to pompowanie optyczne.

Pobudzenie nierezonansowe niesie ze sobą również silniejsze nieliniowości niż w przypadku pobudzania rezonansowego. W celu wyjaśnienia tego faktu należy odnieść się do opisu oddziaływania kulombowskiego między ekscytonami (składowymi polarytonów odpowiedzialnymi za wydajne oddziaływanie polarytonów). Opisać je można za pomocą równania [52]:

$$H_{XX} = \int d^2r \frac{V_{XX}}{2} \hat{\Psi}_X^\dagger(r) \hat{\Psi}_X^\dagger(r) \hat{\Psi}_X(r) \hat{\Psi}_X(r) \quad (1.45)$$

gdzie operator $\hat{\Psi}_X(r)$ ma postać $\hat{\Psi}_X(r) = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_k b_k e^{ik_{\parallel}r}$. W wyrażeniu tym V_{XX} to efektywny potencjał interakcji między dwoma ekscytonami. Jego wartość można przybliżyć wyrażeniem $V_{XX} \approx \frac{6e^2 a_B}{\epsilon} = \frac{24\pi\hbar^2}{\mu} = g_{exc}$ gdzie dla objętościowego CdTe $a_B^{3D} = 8$ nm, a dla studni kwantowej o szerokości 10 nm wartość ta wynosi 4 nm. [22]

Rozważając tylko dolną gałąź polarytonową, stała oddziaływania rezerwuaru ekscytonów z kondensatem polarytonów wynosi:

$$g_R = |X|^2 g_{exc} \quad (1.46)$$

gdzie $|X|$ oznacza współczynnik Hopfielda w $k_{\parallel} = 0$ opisujący zawartość ekscytonową polarytonu. Natomiast stała oddziaływania polaryton-polaryton w kondensacie wynosi:

$$g = |X|^4 g_{exc} \quad (1.47)$$

1.4.1 LASEROWANIE FOTONOWE NA EKSCYTONACH

Laserowanie fotonowe angażujące ekscytony, podobnie jak laserowanie polarytonowe omawiane we wcześniejszej części tego rozdziału, uzyskiwane jest głównie w konfiguracji wnęk

typu VCSEL. W tym przypadku spontaniczna prędkość emisji modyfikowana jest przez efekt Purcella. W konsekwencji, w strukturach mikrownękowych, w których obserwowane są procesy związane z laserowaniem polarytonowym, możliwe jest również uzyskanie, po przejściu do reżimu słabego sprzężenia ekscyton-foton, laserowania fotonowego. W przypadku laserowania fotonowego emisja uzyskiwana jest w wyniku inwersji obsadzeń oraz emisji wymuszonej towarzyszącej przejściu promienistemu do niższego stanu energetycznego. Zmiana typu laserowania z polarytonowego do fotonowego następuje, gdy oddziaływania kulombowskie między nośnikami są zbyt silne, aby możliwe było utrzymanie warunków silnego sprzężenia między ekscytonami i fotonami. Obserwowane cechy, omawiane w przypadku lasera polarytonowego takie jak nieliniowość, zawężenie i przesunięcie energetyczne linii emisyjnej występują w laserze fotonowym, co skutkuje możliwością zaobserwowania kolejnego progu laserowania dla danej struktury.

1.4.2 LASEROWANIE FOTONOWEGO NA PLAZMIE ELEKTRONOWO-DZIUROWEJ

Jak zostało omówione w poprzednim podrozdziale, dwa fermiony posiadające przeciwny znak ładunku, takie jak elektron i dziura przyciągane są oddziaływaniem kulombowskim, w wyniku którego tworzą kompozytowy bozon nazywany ekscytonem. Jednakże relacja komutacji bozonowej jest spełniona tylko w przypadku, gdy populacja ekscytonów n_X jest mała i spełnia nierówność $n_X a_B^2 \ll 1$ [22]. Oznacza to, że ekscytony można traktować jako bozony, tylko jeśli ich gęstość jest na tyle mała, że nie przekrywają się w przestrzeni. Jeśli gęstość nośników jest na tyle duża, że średnia odległość między dwoma sąsiadującymi ekscytonami jest porównywalna z promieniem Bohra ekscytonu oddziaływanie kulombowskie między elektronem i dziurą zostaje ekranowane przez oddziaływanie z otoczeniem w postaci sąsiednich nośników i fermionowa natura elektronów i dziur staje się dominująca. [54] Gęstość krytyczna, przy której następuje przejście fazowe, nazywana jest gęstością Motta. Poniżej tej wartości elektrony i dziury można opisać w kategoriach gazu ekscytonowego, natomiast powyżej należy używać opisu plazmy elektronowo-dziurowej. Po osiągnięciu wartości, w której następuje dysocjacja ekscytonów, gaz elektronowo-dziurowy zawiera dużą gęstość nośników, w wyniku czego prawdopodobieństwo rekombinacji niezwiązanych nośników jest relatywnie duże. Dalsze zwiększanie mocy pobudzania powinno doprowadzić do pojawienia się trzeciego progu

laserowania związanego z laserowaniem fotonowym angażującym plazmę elektronowo-dziurową, który jest poprzedzony spadkiem intensywności wynikającym z osiągnięcia gęstości Motta.

1.5 PROCESY PARAMETRYCZNE POLARYTONÓW EKSCYTONOWYCH

Silne sprzężenie wzbudzeń elektronowych studni kwantowej oraz modów mikrownęki Fabry-Pérot utworzonej z luster braggowskich wpływa na zmianę kształtu krzywej dyspersji i umożliwia wydajne rozpraszanie polarytonów. Dzięki tej nieparabolicznej postaci gałęzi polarytonowej, powyżej progowej mocy pobudzania mogą zachodzić procesy parametryczne. Proces parametryczny rozumiany jest jako zjawisko, w którym światło oddziałuje z materią, nie zmieniając stanu kwantowego półprzewodnika, w którym następuje oddziaływanie, czyli bez transferu energii oraz pędu do półprzewodnika. W rezultacie stan początkowy i końcowy układu pozostaje identyczny. Niezdegenerowane rozpraszanie parametryczne polarytonów staje się wydajne, gdy polarytony gromadzą się w obszarze *bottleneck* krzywej dyspersji lub gdy wzbudzenie jest dostosowane do tak zwanego *kąta magicznego*. Eksperyment, który jednoznacznie wskazał rolę wzmacniania parametrycznego w osiągnięciu kondensatu polarytonów, został zaprezentowany w 2000 roku przez Savvidisa i współpracowników [39]. W tym eksperymencie wiązka pompująca dostrojona była do energii dolnej gałęzi polarytonowej, pod określonym kątem padania, podczas gdy wiązka sondy była rezonansowa ze stanem podstawowym. Wzmocnienie sygnału pochodzącego z sondy dla szczególnego kąta wzbudzenia wskazuje na to, że efekt wzmocnienia odpowiada rozpraszanie polarytonów, wynikające z ich wzajemnego oddziaływania. Wprowadzenie rozpraszania parametrycznego do opisu dynamiki polarytonów pozwoliło na wyjaśnienie szeregu nieliniowych procesów zachodzących w układach polarytonowych np. kondensacji polarytonów i tworzenia solitonów.

Rozpraszanie parametryczne polarytonów jest analogiem procesu mieszania czterech fal znanym z optyki nieliniowej. Zasady zachowania pędu oraz energii w tym procesie można przedstawić następującymi równaniami:

$$\begin{aligned} 2k_p &= k_s + k_i \\ 2E_p &= E_s + E_i \end{aligned} \tag{1.48}$$

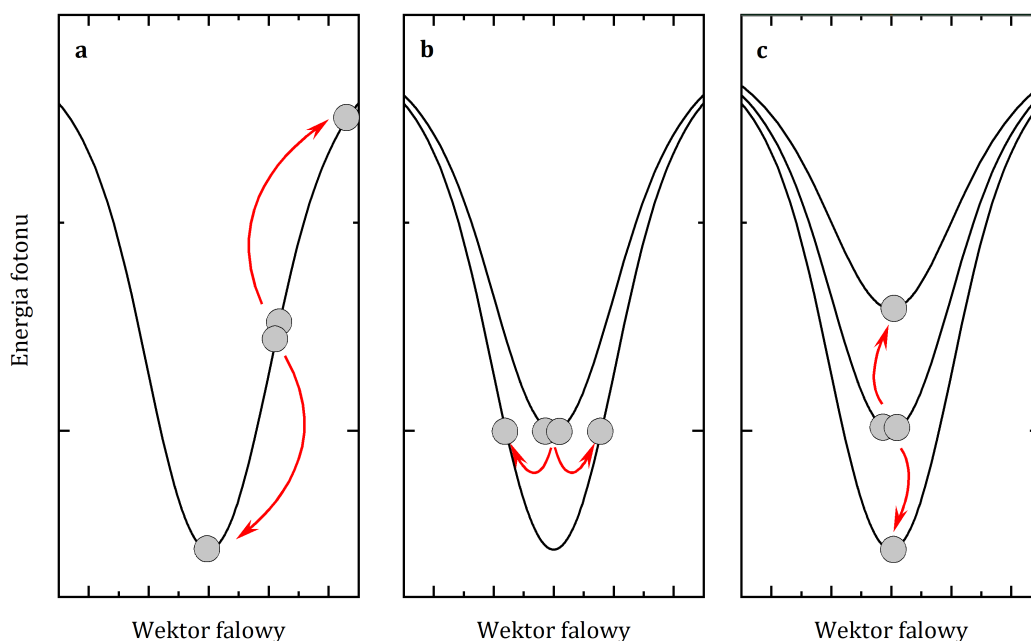
gdzie k_p i E_p reprezentują pęd i energię polarytonów przed rozproszeniem, a k_s i E_s oraz k_i i E_i odpowiednio polarytonów rozproszonych.

Jak zostało przytoczone we fragmencie o laserowaniu polarytonowym, w przypadku układu dwupoziomowego tworzonego np. przez ekscyton związany w studni kwantowej oraz mod w mikrownęce optycznej możliwy jest do zaobserwowania tylko jeden typ rozpraszania parametrycznego, w którym nie występuje degeneracja w energii i pędzie (rysunek 1.5.1 **a**). W procesie tym kreowane pod wpływem pompowania optycznego lub elektrycznego polarytony oddziałują ze sobą, powodując rozpraszanie do stanu podstawowego. W wyniku zderzeń zmieniają one swoją energię oraz pęd, nie zmieniając jednak ich sumarycznej wartości. W opisie operatorów kreacji i anihilacji dwa identyczne polarytony generowane przez pompę są anihilowane, by następnie pojawić się w dwóch innych energiach oraz różnych wektorach falowych (typowo nazywane *signal* i *idler*), ale o sumarycznie zachowanej wartości. Stan *signal* będzie odpowiadał najniższej dostępnej energii znajdującej się na dnie krzywej dyspersji w $k = 0$, wtedy wektor falowy *idler* będzie dwukrotnie większy niż polarytonu wygenerowanego przez pompę ($2k_p = k_I$). Rozpraszanie to występuje dla szerokiego zakresu wektorów falowych.

Aby umożliwić badanie zdegenerowanych procesów rozpraszania parametrycznego, wymagane są gałęzie polarytonowe wykazujące zdegenerowane wartości, które są oferowane m.in. przez układy sprzężonych mikrownek. W przypadku tego typu systemów wielopoziomowych w ogólności możliwe jest badanie rozpraszania zdegenerowanego w energii (rysunek 1.5.1 **b**) oraz pędzie (rysunek 1.5.1 **c**).

Rozpraszanie zdegenerowane w energii występuje, gdy dwa polarytony osiągające najniższą dostępną energię na gałęzi polarytonowej w wyniku zderzenia rozpraszają się do przeciwnych wartości $-k$ oraz k . Jeśli występuje dodatkowy poziom energetyczny, np. inna gałąź polarytonowa, istnieje możliwość transferu do tej gałęzi (rysunek 1.5.1 **b**). W układzie takim w wyniku zdegenerowanych wartości energii zasada zachowania energii jest spełniona w sposób trywialny, ponieważ kwazicząstki nie zmieniają energii, natomiast sumaryczna wartość wektorów falowych zapewnia spełnienie zasady zachowania pędu.

Jeśli występują przynajmniej trzy równo oddalone poziomy energetyczne, możliwy jest transfer w tej samej wartości wektora falowego ze środkowej gałęzi jednocześnie dwóch



Rysunek 1.5.1: Schemat przykładowych procesów parametrycznych w układach polarytonowych. **a** Niezdegenerowane rozpraszanie parametryczne. **b** Zdegenerowane w energii rozpraszanie parametryczne. **c** Zdegenerowane w pędzie rozpraszanie parametryczne.

polarytonów - jednego do wyższej i drugiego do niższej gałęzi polarytonowej (rysunek 1.5.1 **c**). Zasada zachowania pędu jest w tym przypadku spełniona dzięki temu, że rozpraszające się kwazicząstki nie zmieniają wartości wektora falowego natomiast sumaryczna wartość energii cząstek przed i po procesie zapewnia spełnienie zasady zachowania energii.

I do not want to label myself a crystallographer as against a physicist and think indeed that though my research is concerned with crystals it is the physical side of it which attracts me.

— Sir Lawrence Bragg

List do Ernesta Rutherforda (3 czerwca 1929 roku)

2

Badane struktury - produkcja i mikrostrukturyzacja

W poniższym rozdziale zostanie opisany proces technologiczny produkcji półprzewodnikowych mikrownęk optycznych ze studniami kwantowymi. W szczególności omówiona zostanie wybrana metoda wzrostu i uzasadniony dobór materiałów użytych do produkcji struktur, które są obiektem badań spektroskopowych przedstawionych w kolejnych rozdziałach niniejszej pracy.

Struktury fotoniczne wykorzystane w badaniach wyhodowano w procesie epitaksji z wiązek molekularnych (*ang. Molecular Beam Epitaxy, MBE*). Główna zaleta tej metody wynika z możliwości precyzyjnej kontroli składu chemicznego uzyskiwanych struktur. Ponadto, wytwarzane warstwy charakteryzują się wysoką jakością krystaliczną i relatywnie małą gęstością dyslokacji, co jest szczególnie istotne w przypadku produkcji struktur składających się z cienkich,

heteroepitaksjalnych warstw.

Wszystkie badane w pracy próbki zostały wytworzone w laboratorium MBE Zakładu Fizyki Ciała Stałego Wydziału Fizyki na Uniwersytecie Warszawskim pod opieką dr. hab. Wojciecha Pacuskiego z użyciem maszyny firmy *SVT Associates*. Za wzrost struktury mikrownęki z pojedynczą studnią CdSe/(Cd,Mg)Se opisanej w dalszej części tego rozdziału 2.3.1 i rozdziale 4 oraz struktur z supersiecią CdSe/(Cd,Mg)Se omówionej w części 2.3.2 i rozdziale 4.7 odpowiedzialny był mgr Rafał Rudniewski. Struktura mikrownękowa z supersiecią CdSe/(Cd,Mg)Se, która posłużyła do opisanía alternatywnej metody wyznaczania rozszczepienia Rabiego i międzygałęziowego transferu polarytonów w eksperymencie pobudzania fotoluminescencji, zaprezentowana w części 2.3.2 i w rozdziale 3.4 została wyprodukowana przez lic. Magdalenę Jurczak. Próbka zawierająca układ dwóch wertykalnie sprzężonych mikrownęk została wyprodukowana przez dr. Macieja Ścieśka. Szczegóły dotyczące tej struktury znajdują się w części 2.3.2 oraz rozdziale 5.

Prezentowane w niniejszej pracy zdjęcia próbek pochodzące ze skaningowego transmisyjnego mikroskopu elektronowego (*ang. Scanning Transmission Electron Microscopy, STEM*) oraz wyniki spektrometrii dyspersji energii promieniowania rentgenowskiego (*ang. Energy-Dispersive X-ray spectroscopy, EDX*) zostały wykonane na Uniwersytecie Warszawskim przez mgr. Kamila Sobczaka oraz dr. hab. Jolantę Borysiuk z wykorzystaniem mikroskopu TALOS F200X firmy FEI (obecnie *The Thermo Scientific*).

Zdjęcia wykonane skaningowym mikroskopem elektronowym (*ang. Scanning Electron Microscopy, SEM*) oraz sprzężonym z nim skaningowym mikroskopem jonowym, jak również mikrostrukturyzacja próbek za pomocą skupionej wiązki jonów galowych (*ang. Focused Ion Beam, FIB*) zostały wykonane przez autora tej pracy. Mikroskop użyty do tych celów to *Helios NanoLab DualBeam 600* wyprodukowany przez firmę FEI (obecnie *The Thermo Scientific*).

2.1 MIKROWNĘKI NA BAZIE MATERIAŁÓW II-VI

Półprzewodniki powstające z pierwiastków pochodzących z grup II-VI układu okresowego oferują możliwości badania efektów optycznych w szerokim zakresie spektralnym

od ultrafioletu po podczerwień. W tym zakresie spektralnym atrakcyjna dla optoelektroniki, w szczególności w kontekście potencjalnych zastosowań komercyjnych jest możliwość produkcji struktur opartych na materiałach emitujących światło koherentne w zakresie widzialnym.

Mniejszy promień ekscytonu Bohra [55] oraz wyższa siła oscylatora ekscytonu w materiałach II-VI niż w związkach utworzonych z pierwiastków grup III-V wpływa na lepszą wydajność emisji, co jest kluczowe w przypadku badania efektów laserowania. Konsekwencją wyższej siły oscylatora jest również znacznie mniejsza wrażliwość na warunki pracy, w tym również spowodowane efektami ekranowania wywołanymi przez silną wiązkę lasera pobudzającego. Otwiera to również możliwość badania efektów ekscytonowych w wyższych temperaturach [56], co daje większe nadzieje na potencjalne zastosowania, w urządzeniach komercyjnych działających w warunkach innych niż laboratoryjne, jak również rozszerza możliwości tych materiałów z punktu widzenia pracy z laserami wysokiej mocy. Siła sprzężenia światło-materia opisywana przez parametr nazywany rozszczepieniem Rabiego jest wprost proporcjonalna do pierwiastka siły oscylatora, dlatego należy oczekiwać, że również efekty polarytonowe powinny być silniejsze niż w analogicznych strukturach wykonanych z pierwiastków pochodzących z grup III-V.

Jednocześnie, zauważalną cechą systemów bazujących na materiałach II-VI jest znaczne nieuporządkowanie fotoniczne. Pomimo wysokiej jakości próbek występują w nich defekty formujące się spontanicznie na etapie wzrostu struktury. Relaksacja tych naprężeń skutkuje powstaniem dyslokacji, które zwiększają nieporządek krystaliczny. Obecność defektów strukturalnych wpływa na powstawanie zaburzeń potencjału fotonicznego, który doprowadził do obserwacji szeregu efektów w systemach opartych na materiałach II-VI takich jak lokalizacja kondensatu polarytonów w jednowymiarowym potencjale [57], oscylacje Josephsona [45], czy pułapkowanie wirów kwantowych [58].

2.2 WZROST EPITAKSJALNY PÓŁPRZEWODNIKOWYCH MIKROWNĘK OPTYCZNYCH

Epitaksja z wiązek molekularnych to zaawansowana metoda wzrostu z fazy gazowej, która umożliwia produkcję złożonych warstw półprzewodnikowych. Struktury wyhodowane tą metodą charakteryzują się wysoką jakością krystaliczną oraz wysoką czystością, o czym świadczy

mała gęstość nieintencjonalnych domieszek pochodzących z zanieczyszczeń źródeł pierwiastków. Metoda ta pozwoliła na wzrost cienkich warstw półprzewodnikowych o bardzo dobrych właściwościach elektrycznych i optycznych, co wpłynęło na gwałtowny rozwój optoelektroniki opartej na materiałach półprzewodnikowych w drugiej połowie XX wieku.

Ideą wzrostu w technice MBE jest osadzanie na przygotowanym podłożu odparowanego w warunkach ultrawysokiej próżni (100 nPa) materiału o wysokiej czystości (typowo od 7 N do 9 N). W tych warunkach średnia droga swobodna odparowywanych pierwiastków znacznie przekracza wymiary komory wzrostu, co minimalizuje rozproszenia strumienia pierwiastków kierowanego na próbkę. Do osiągnięcia tak wysokiej próżni używa się kolejno włączanych pomp: membranowej, turbomolekularnej, jonowej oraz kriogenicznej. Wewnętrzna strona komory wzrostu chłodzona jest ciekłym azotem (tzw. płaszczem azotowym), co powoduje adsorpcję pozostających zanieczyszczeń i zwiększenie próżni w komorze wzrostu. Źródła pierwiastków umieszczane są w komórkach efuzyjnych typu Knudsen, gdzie są ogrzewane w ceramicznych tyglach za pomocą niezależnych grzałek. Komórki wyposażone są w termopary, które umożliwiają kontrolę temperatury za pomocą sprzężenia zwrotnego. W komórkach typu Knudsen strumień atomów jest determinowany przez temperaturę komórki efuzyjnej, dlatego dla całego procesu kluczowym zadaniem jest precyzyjna kontrola tego parametru.

Oprócz temperatury komórki, na szybkość wzrostu ma również wpływ ilość materiału znajdującego się w komórce oraz ciśnienie w komorze, dlatego dla uzyskania optymalnych parametrów wzrostu istotna jest kalibracja strumienia materiału. Podczas wzrostu parametrami kontrolowanymi przez użytkownika jest również temperatura podłoża, która decyduje o wydajności adsorpcji atomów na powierzchni podłoża oraz ich ruchliwości. Każdy materiał charakteryzuje się inną specyficzną temperaturą wzrostu, więc parametr ten musi być kalibrowany przed właściwym wzrostem. Kolejnym kontrolowanym parametrem jest temperatura źródła decydująca o strumieniu pierwiastków emitowanych z komórki efuzyjnej. Wpływa ona na szybkość wzrostu, co w konsekwencji determinuje jakość krystaliczną warstw epitaksjalnych. Ze względu na stopień złożoności struktur mikrowętkowych składających się zazwyczaj z dużej liczby warstw tworzących zwierciadła Bragga bardzo istotna jest precyzyjna kontrola parametrów wzrostu. Typowa temperatura wzrostu pierwiastków z grup II-VI w czasie

wzrostu wynosi ok. 350°C , a typowa szybkość wzrostu kryształu to ok. 1 monowarstwa na sekundę. W przypadku materiałów o wysokiej prężności par, takich jak tellur lub selen, które używane są w tej pracy, nawet niewielkie zmiany temperatury mogą powodować duże wahania strumienia oraz wynikającej z niego szybkości osadzania. Materiał, który w wyniku sublimacji przechodzi w formę gazową, kierowany jest ruchem balistycznym na podłoże umieszczone w komorze wzrostu. Precyzyjne zdalne sterowanie przesłonami zamykającymi wylot gazów z komórki efuzyjnej pozwala na kontrolę, który pierwiastek oraz jak długo dostarczany jest do podłoża. Komórki efuzyjne zamontowane są pod pewnym kątem do normalnej podłoża, co skutkuje wytworzeniem gradientu grubości hodowanych warstw. W celu uzyskania jednorodnej grubości warstwy podczas wzrostu możliwe jest obracanie podłoża.

Nawet niewielkie niedopasowanie sieciowe sąsiadujących warstw może doprowadzić do pojawienia się naprężeń, które relaksują przez dyslokacje. W celu uniknięcia naprężeń i w konsekwencji propagujących się dyslokacji w próbce substrat powinien być wybierany w taki sposób, aby niedopasowanie sieciowe między podłożem a hodowanym materiałem było możliwie najmniejsze. W przypadku braku możliwości zastosowania podłoża dopasowanego sieciowo stosuje się grubą warstwę buforową, w której następują relaksacje naprężeń. W kontekście badań nad mikrownkami optycznymi uzyskanie materiałów na bazie związków II-VI o porównywalnej jakości i właściwościach optycznych do ich odpowiedników III-V jest znacznie trudniejsze i nadal pozostaje wyzwaniem technologicznym. Problemy występujące w tych systemach wynikają z dużego spontanicznie występującego nieuporządkowania w warstwach.

W prezentowanej pracy materiałem podłożowym dla każdej próbki był monokrystaliczny arsenek galu w formie dwu- lub trzycalowej płytki (*ang. wafer*). Zaadsorbowane na powierzchni podłoża atomy, dyfundują do miejsca, w którym osiągają minimum energii i wbudowują się w istniejącą już strukturę. Wzrost oparty na tym schemacie następuje warstwa po warstwie z atomową precyzją, dzięki czemu możliwe jest uzyskanie wysokiej jakości monokryształów oraz ostrych międzypowierzchni między kolejnymi warstwami.

Ze względu na trwający długo proces powstawania struktur oraz wielokrotne zmiany materiałów konieczna jest ciągła obserwacja postępów wzrostu, ponieważ jakość uzyskiwanej struktury zależy głównie od stabilności warunków prowadzenia wzrostu epitaksjalnego. Realizuje się to przez pomiar *in situ* odbicia światła białego od próbki w celu obserwacji interferencji

w cienkich warstwach, z których można wyznaczyć grubość hodowanej warstwy. Zmiany współczynnika odbicia spowodowane są zmianą grubości warstwy znajdującej się najbliżej powierzchni. Przesunięciu o pełną fazę odpowiada zwiększenie grubości struktury o połowę długości fali propagującej się wewnątrz materiału. Drugą techniką stosowaną podczas wzrostu jest dyfrakcja wysokoenergetycznych elektronów (*ang. Reflection High-Energy Electron Diffraction, RHEED*) dostarczająca cennych informacji na temat jakości krystalizacji, modu wzrostu (dwuwymiarowy lub trójwymiarowy), jakości powierzchni oraz tempa wzrostu. Metoda *RHEED* używa działu elektronowego emitującego wysokoenergetyczną wiązkę elektronów, która uderza w próbkę pod małym kątem do powierzchni próbki i w wyniku dyfrakcji na atomach powierzchniowych (kilka warstw atomowych) ulega konstruktywnej interferencji i tworzą regularne wzory na detektorze (typowo matrycy CCD).

Pewnym problemem technologicznym w przeciwieństwie do III-V występującym w materiałach II-VI jest brak materiałów wykazujących znaczny kontrast współczynników załamania (niezbędny do uzyskania szerokiego zakresu spektralnego fotonicznej przerwy wzbronionej) oraz jednocześnie zbliżoną stałą sieci. Problem ten można rozwiązać na kilka sposobów. Pierwszy z nich to zastosowanie binarnej supersieci o krótkim okresie takiej jak w artykułach [59, 60]. Zwiększa to jednak złożoność całej struktury i podnosi jednocześnie ryzyko powstawania defektów strukturalnych. Druga metoda to użycie złożonych warstw krystalicznych, takich jak kompozyty (Cd,Zn,Mg)Te z różnymi proporcjami stechiometrycznymi, przez co możliwe jest złożenie par braggowskich tworzących lustra poprzez zastosowanie warstw o innej zawartości magnezu [61]. Różną zawartość magnezu uzyskuje się dzięki zastosowaniu dwóch oddzielnie kontrolowanych źródeł tego pierwiastka. Zastosowanie magnezu może być jednak niekorzystne, ze względu na jego higroskopijność, która prowadzi do utleniania tego pierwiastka i w konsekwencji szybkiej degradacji próbki na powietrzu. Poszukiwania alternatywnych rozwiązań pozwalających na ominięcie wyżej wymienionych problemów nadal trwają [62].

2.3 BADANE PRÓBK

Do przeprowadzenia badań prezentowanych niniejszej pracy zastosowano trzy typy struktur:

- pojedyncza mikrownęka z pojedynczą studnią kwantową $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$,
- pojedyncza mikrownęka z supersiecią $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$,
- układ dwóch mikrownęk z trzema studniami kwantowymi $(\text{Cd,Zn})\text{Te}/(\text{Cd,Zn,Mg})\text{Te}$ w *górnej* oraz $(\text{Cd,Zn})\text{Te}/(\text{Cd,Zn,Mg,Mn})\text{Te}$ w *dolnej* wnęce¹.

Poszczególne struktury omówione zostały w następnych podrozdziałach.

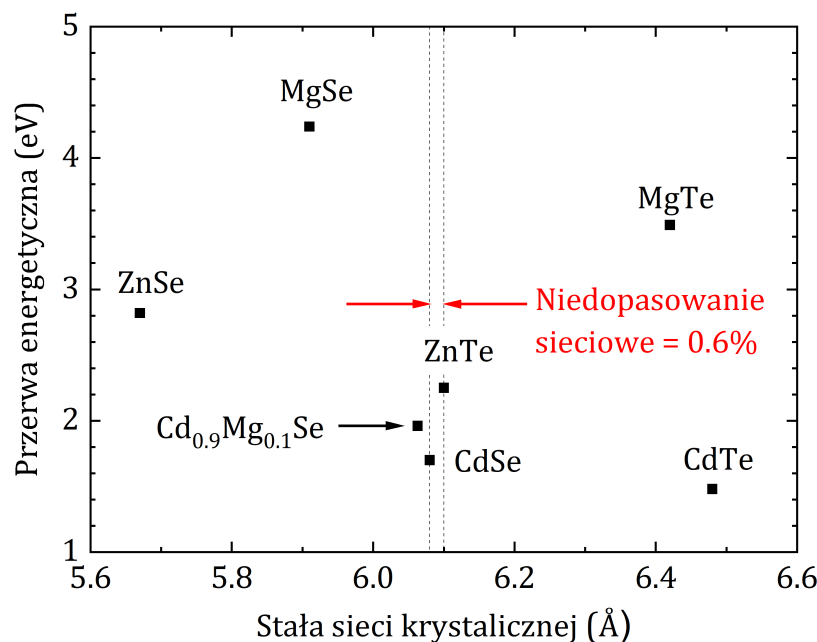
2.3.1 MIKROWNĘKA BAZUJĄCA NA SYSTEMIE SELENKOWYM I TELLURKOWYM Z POJEDYNCZĄ STUDNIĄ KWANTOWĄ $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$

Struktury w stosunkowo nowym systemie opartym na selenkach i tellurkach ze studnią kwantową $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$ zostały zaprojektowane w celu zwiększenia siły oscylatora ekscytonu w stosunku do częściej używanych mikrownęk ze studniami CdTe . Oczekiwane korzyści płynące ze zwiększenia siły wiązania ekscytonu to możliwość obserwacji efektów laserowania w warunkach słabego i silnego sprzężenia w wyższych temperaturach. Wytworzenie struktury dopasowanej sieciowo ze studnią kwantową wykazującą zadowalająco wąską linię emisyjną w systemie *selenkowym* lub *selenkowo-tellurkowym* pozostaje wyzwaniem technologicznym i wymaga dalszej optymalizacji wzrostu epitaksjalnego.

W badanym systemie zastosowano studnie kwantowe typu I CdSe w barierze $(\text{Cd,Mg})\text{Se}$ z mikrownęką angażującą Te i Se dopasowaną sieciowo do ZnTe (rysunek 2.3.1).

W związku z tym, że sprzężenie ekscyton-foton rośnie wraz z amplitudą pola elektrycznego w celu zmaksymalizowania oddziaływania ekscytonów z modem fotonowym

¹W celu rozróżnienia wnętrza znajdująca się bliżej powierzchni próbki będzie nazywana *górną*, natomiast umieszczona bliżej podłoża próbki - *dolną*.

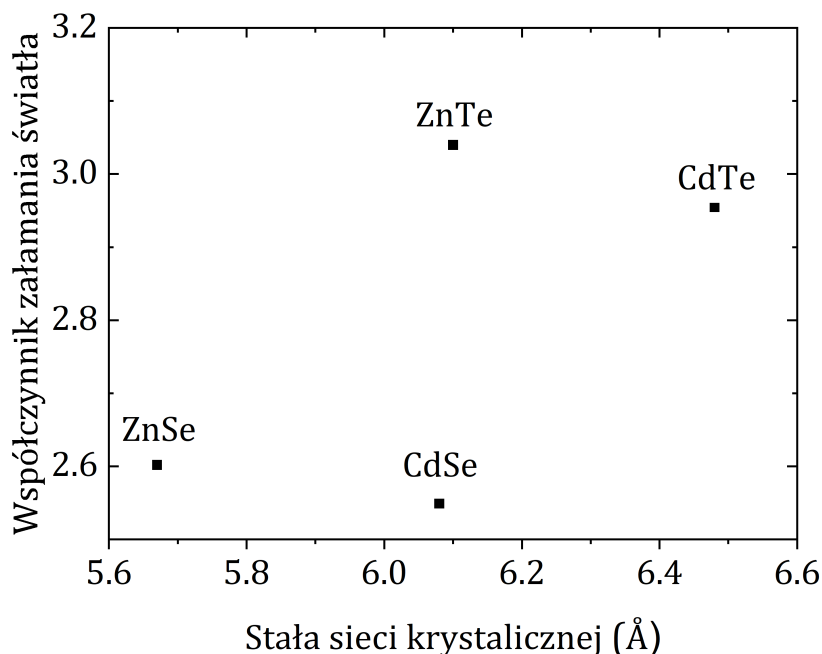


Rysunek 2.3.1: Przerwa energetyczna i stała sieci krystalicznej warstw tworzących struktury badane w pracy.

studnię kwantową umieszczono precyzyjnie w maksimum pola elektrycznego znajdującego się w środku wnęki o szerokości połowy długości fali. Pozycja ta zapewnia, że obserwowane efekty polarytonowe powinny być możliwie największe. Dzięki zastosowaniu układu z możliwie najmniejszą objętością wnęki można spodziewać się znacznego obniżenia progu laserowania polarytonowego.

Na rysunku 2.3.2 przedstawiono wartości współczynników załamania światła i stałych sieci krystalicznych dla materiałów, z których wykonane są struktury badane w niniejszej pracy. Z porównania tych współczynników dla mikrownęki i otaczającej jej pierwszej warstwy zwierciadła Bragga w strukturze opisywanej w tym rozdziale wynika, że granice wnęki powinny z dużą precyzją stanowić węzły pola elektrycznego.

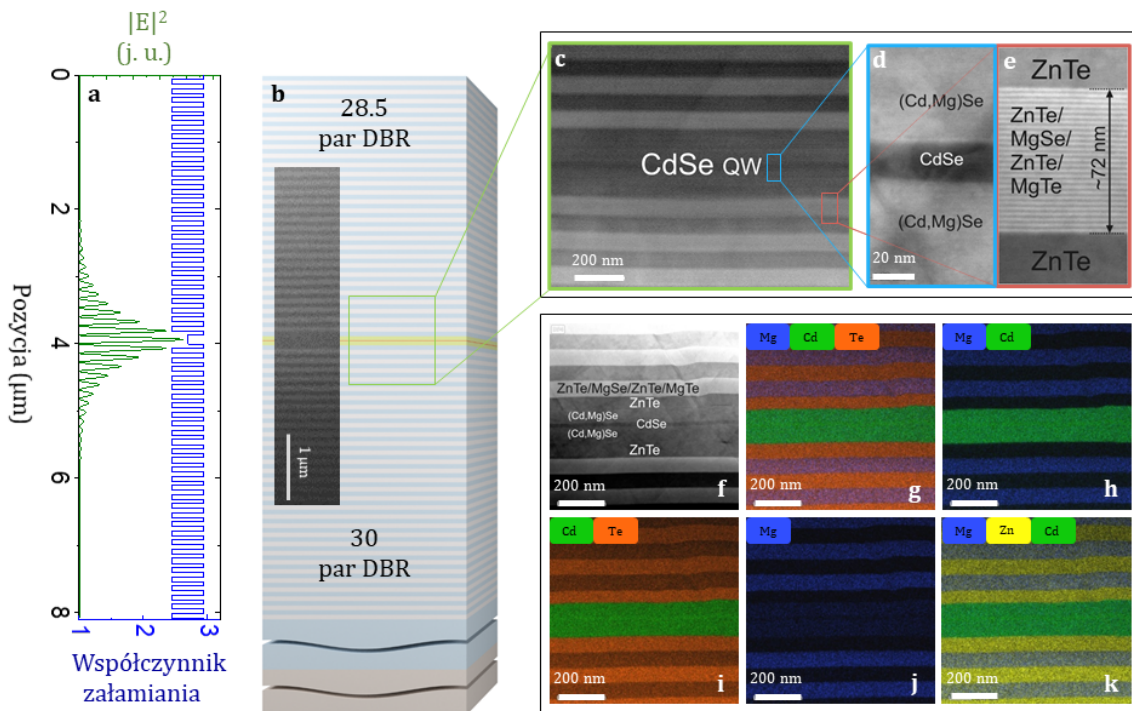
Struktura została zaprojektowana w taki sposób, żeby studnia kwantowa była



Rysunek 2.3.2: Wartości współczynnika załamania światła i stała sieci krystalicznej warstw tworzących struktury badane w pracy.

umieszczona w obszarze najsilniejszego pola elektrycznego w mikrownęce (rysunek 2.3.3 **a**). Na rysunku 2.3.3 **b** przedstawiono schemat oraz zdjęcie SEM struktury mikrownękowej ze studnią kwantową CdSe/(Cd,Mg)Se otoczoną przez dwa zwierciadła typu braggowskiego.

Zwierciadła te składają się z okresowo ułożonych warstw ZnTe służących za materiał o wysokim współczynniku załamania światła oraz supersieci utworzonej z binarnych warstw ZnTe|MgSe|ZnTe|MgSe wykazującej niższy współczynnik załamania w porównaniu do ZnTe. Kontrast współczynników załamania w tej strukturze wynosi około 0,5. Struktura została wyhodowana na podłożu GaAs. W celu uniknięcia naprężeń na substrat nałożono grubą warstwę buforową ZnTe o grubości około 1 μm . Zastosowana studnia kwantowa CdSe/(Cd,Mg)Se o grubości ok. 17 nm (wartość uzyskana z pomiarów STEM) emituje światło o długości fali ok. $\lambda = 720 \text{ nm}$ [63]. Zdjęcia 2.3.3 **c**, **d**, **e** pochodzące z transmisyjnego



Rysunek 2.3.3: Schemat struktury mikrowękowej. **a** Wynik symulacji rozkładu przestrzennego pola elektrycznego i rzeczywista część współczynnika załamania badanej mikrowęki. **b** Schemat próbki przedstawiający mikrowękę z pojedynczą studnią kwantową CdSe/(Cd,Mg)Se, otoczoną zwierciadłem Bragga (DBR) oraz przekrój próbki zobrazowany skaningowym mikroskopem elektronowym. **c** Obraz z transmisyjnego mikroskopu elektronowego przedstawiający przekrój próbki w obszarze mikrowęki, **d** studnia kwantowa CdSe/(Cd,Mg)Se, **e** supersieć ZnTe|MgSe|ZnTe|MgTe. **f–k** Obraz uzyskany ze spektroskopii rentgenowskiej z dyspersją energetyczną (EDX) w przekroju poprzecznym próbki w obszarze mikrowęki przedstawiający przestrzenny rozkład atomów Mg, Cd, Te i Zn.

mikroskopu elektronowego prezentują kolejne zbliżenia, na których widać ostre granice między kolejnymi warstwami, co sugeruje, że nie nastąpiło mieszanie się materiałów na granicy warstw. Zostało to jednoznacznie potwierdzone za pomocą spektrometrii dyspersji energii promieniowania rentgenowskiego, której wynik pokazany jest na rysunku 2.3.3 **f, g, h, i, j, k**. Prezentuje on skład struktury oraz rozkład przestrzenny pierwiastków w warstwach z wyraźną separacją pierwiastków. Mimo ogólnie dobrej jakości struktur na zdjęciach *TEM* można dostrzec

dyslokacje, które są głównym powodem powstawania pułapek wprowadzających dodatkowe związanie fotonów oraz nośników w kierunkach równoległych do powierzchni próbki.

W wyniku asymetrycznego ułożenia źródeł pierwiastków w komorze wzrostu zatrzymanie obrotu próbki podczas całego procesu powoduje, że wyhodowana struktura posiada różną grubość warstw w zależności od badanego miejsca. Dzięki temu zmieniając miejsce na próbce, możliwe jest dostrojenie modu wnękowego do energii emisji studni kwantowej.

Przerwa wzbroniona wszystkich warstw tworzących zwierciadła Bragga: ZnTe, MgSe, MgTe jest większa niż 2,25 eV. W temperaturze 8 K energia ekscytynu studni kwantowej, a także modu mikrownękowego jest znacznie niższa i wynosi poniżej 1,74 eV. Pozwala to na uniknięcie wpływu pasożytniczej absorpcji w lustrach. W celu zmniejszenia gęstości dyslokacji dobrano materiały wykazujące dobre dopasowanie sieciowe. Między ZnTe, a warstwą studni kwantowej CdSe i bariery $\text{Cd}_{0,9}\text{Mg}_{0,1}\text{Se}$ wynosi ono odpowiednio 0,6% i nieco poniżej 1%. Zapewnia to wysoką jakość badanej struktury.

2.3.2 STRUKTURY MIKROWNĘKOWE Z SUPERSIECIĄ $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$

Próbki te są zbliżone do struktury prezentowanej w podrozdziale 2.3.1. Podobnie jak w mikrownęce z pojedynczą studnią kwantową zastosowano supersieć z warstwami ZnTe|MgTe|MgSe|MgTe jako materiał o niskim współczynniku załamania oraz warstwę ZnTe służącą jako materiał o wysokim współczynniku załamania w lustrach Bragga. Stosunkowo duża liczba studni kwantowych została zaprojektowana w celu uzyskania możliwie dużego sprzężenia oddziaływania ekscyton-foton [23, 64] i zwiększenia wydajności emisji co umożliwia uzyskanie warunków silnego sprzężenia w wyższych temperaturach i obniżenie progu laserowania polarytonowego. W tym przypadku decyzja o użyciu supersieci zamiast wielostudni jako emitery jest kompromisem między możliwie dużym zwiększeniem siły oscylatora przez użycie dużej liczby studni kwantowych i przestrzennym umieszczeniem emitery w maksimum pola elektrycznego. Wnęki wyhodowano z gradientem grubości, dzięki czemu możliwe było strojenie energii modu optycznego przez wybór odpowiedniego miejsca na próbce.

MIKROWNĘKA Z ZESTAWEM OŚMIU STUDNI KWANTOWYCH $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$ O SZEROKOŚCI 20 NM

Struktura została wyhodowana na trzycalowym podłożu GaAs, na które nałożono trzy warstwy buforowe: GaAs, ZnSe i ZnTe w celu zmniejszenia gęstości dyslokacji w strukturze. Mniejsza liczba par, t.j. 16 w dolnym lustrze i 13,5 w górnym, pozwala na ograniczenie ryzyka występowania defektów strukturalnych, nie zmieniając znaczenie dobroci wnęki, która w przypadku tej struktury wynosi ok. 500. Emiter umieszczony w mikrownęce o szerokości połowy długości fali wykonany jest z ośmiu dwunastonanometrowych studni kwantowych CdSe przedzielonych 1 nm barierą MgSe. Zaletą zastosowania trzycalowego podłoża jest duży zakres strojenia spektralnego fotonicznej przerwy wzbronionej, który wynosi ok. 150 nm (od 600 nm do 750 nm).

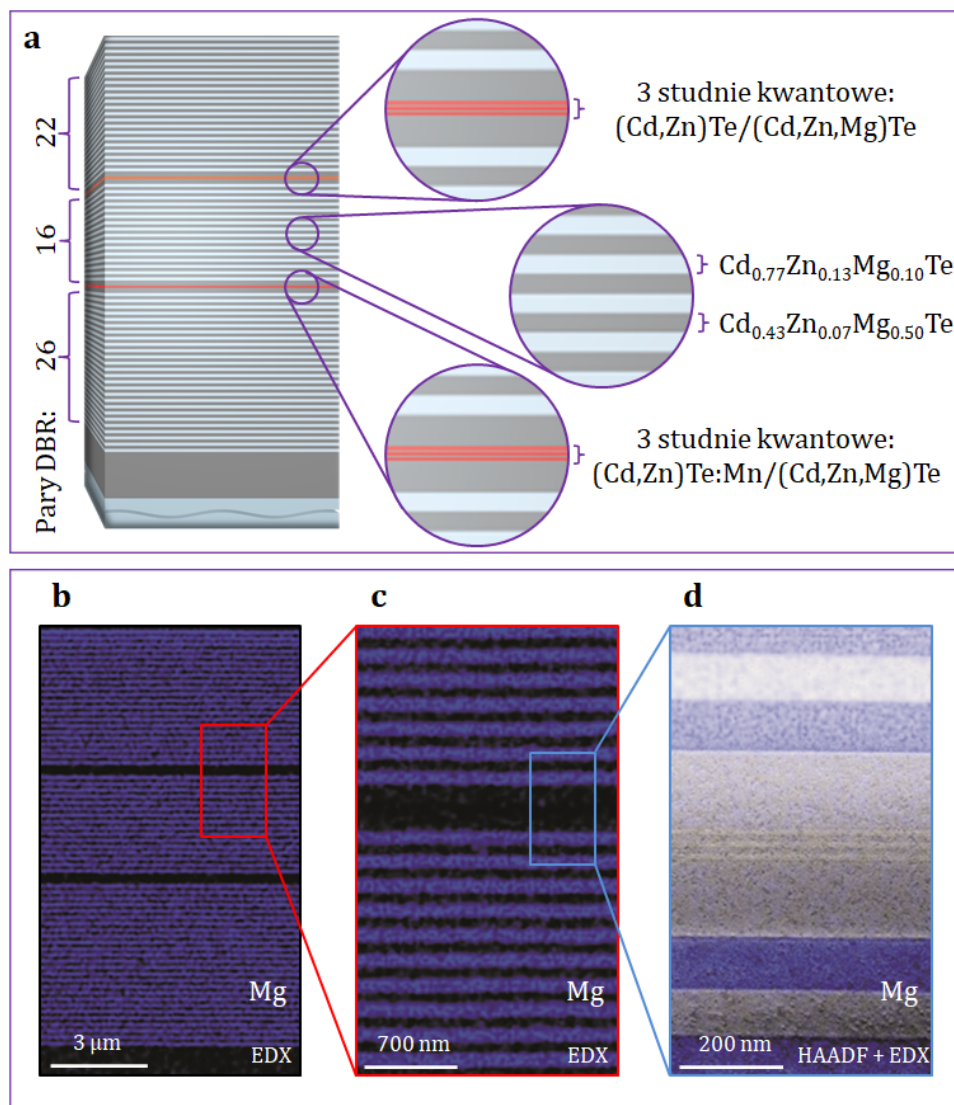
MIKROWNĘKA Z ZESTAWEM DZIESIĘCIU STUDNI KWANTOWYCH $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$ O SZEROKOŚCI 1 NM

Struktura została wyhodowana na dwucalowym podłożu GaAs. Zawiera ona dziesięć warstw CdSe o grubości 1 nm, odseparowanych od siebie barierą $\text{Cd}_{0.75}\text{Mg}_{0.25}\text{Se}$ o grubości 2 nm. Emiter ten umieszczony jest w mikrownęce o szerokości połowy długości fali. Strukturę mikrownęki o dobroci wynoszącej 3000 uzyskano przez otoczenie warstwy $\text{Cd}_{0.75}\text{Mg}_{0.25}\text{Se}$ zwierciadłami Bragga składającymi się z warstwy ZnTe i supersieci ZnTe|MgTe|MgSe|MgTe (20 par w dolnym lustrze i 18,5 w górnym).

UKŁAD SPRZĘŻONYCH MIKROWNĘK ZE STUDNIAMI KWANTOWYMI $(\text{Cd,Zn})\text{Te}/(\text{Cd,Zn,Mg})\text{Te}$

Do wyprodukowania struktury zawierającej układ dwóch mikrownęk wykorzystano tylko związki tellurkowe. System materiałowy oparty na jednym typie związków pozwala na znaczące zminimalizowanie defektów strukturalnych, co było kluczowe w tej części badań.

Cała struktura była dopasowana do stałej sieci MgTe tak, aby przerwę energetyczną i współczynnik załamania warstw można było stroić poprzez, procentową zawartość magnezu nie



Rysunek 2.3.4: **a** Schemat próbki zawierającej układ sprzężonych wertykalnie planarnych mikrowętek optycznych. Rozkład przestrzenny magnezu w kolejnych przybliżeniach **b**, **c**, **d** uzyskany za pomocą spektroskopii rentgenowskiej z dyspersją energetyczną.

tworząc przy tym znacznych naprężeń w strukturze.

Struktura fotoniczna wykorzystana do badań opisanych w rozdziale 5 niniejszej pracy

składa się z dwóch mikrownęk optycznych z zestawem studni kwantowych: $(\text{Cd,Zn})\text{Te}/(\text{Cd,Zn,Mg})\text{Te}$ w górnej oraz $(\text{Cd,Zn})\text{Te}/(\text{Cd,Zn,Mg, Mn})\text{Te}$ w dolnej mikrownęce. Struktura została wytworzona na trzycalowym podłożu GaAs. Schemat próbki przedstawiono na rysunku 2.3.4 a. Zastosowano lustra typu braggowskiego wykonane ze stopu $(\text{Cd,Zn,Mg})\text{Te}$, w których kontrast współczynników złamania sąsiednich warstw, obliczony na podstawie szerokości *stopbandu* za pomocą równania 1.6 wynosi 1,15. System materiałowy użyty do produkcji zwierciadeł wykorzystanych w tej części pracy bazował na projekcie, który omawiany był w kilku poprzednich pracach pochodzących z laboratorium MBE Wydziału Fizyki UW [65–67]. Warstwa z wysoką wartością współczynnika załamania zawiera Cd: 77%, Zn: 13% Mg: 10%, natomiast warstwa z niskim współczynnikiem załamania - Cd: 43%, Zn: 7% Mg: 50%). W kolejnych przybliżeniach na rysunku 2.3.4 b, c, d za pomocą spektroskopii rentgenowskiej z dyspersją energetyczną został zobrazowany rozkład przestrzenny magnezu w strukturze.

Podobnie jak w innych opisywanych w tej pracy próbkach zastosowano technikę wzrostu z nieobracającym się podłożem. Jednakowy gradient grubości hodowanych warstw sprawia, że wnęki zachowują tę samą grubość dla danego miejsca na próbce. Zapewnia to jednakową wartość siły sprzężenia między wnękami i umożliwia jednoczesne strojenie sprzężonych modów pochodzących z dwóch mikrownęk. Pozwala to na zmianę odstrojenia między modami wnękowymi a ekscytonami w studniach kwantowych przez zmianę pozycji na próbce przy niezmienionej sile sprzężenia między modami.

Próbka zawierająca układ dwóch sprzężonych mikrownęk została poprzednio użyta do obserwacji transferu energii między stanami ekscytonowymi na odległość ponad $2\text{ }\mu\text{m}$ [68].

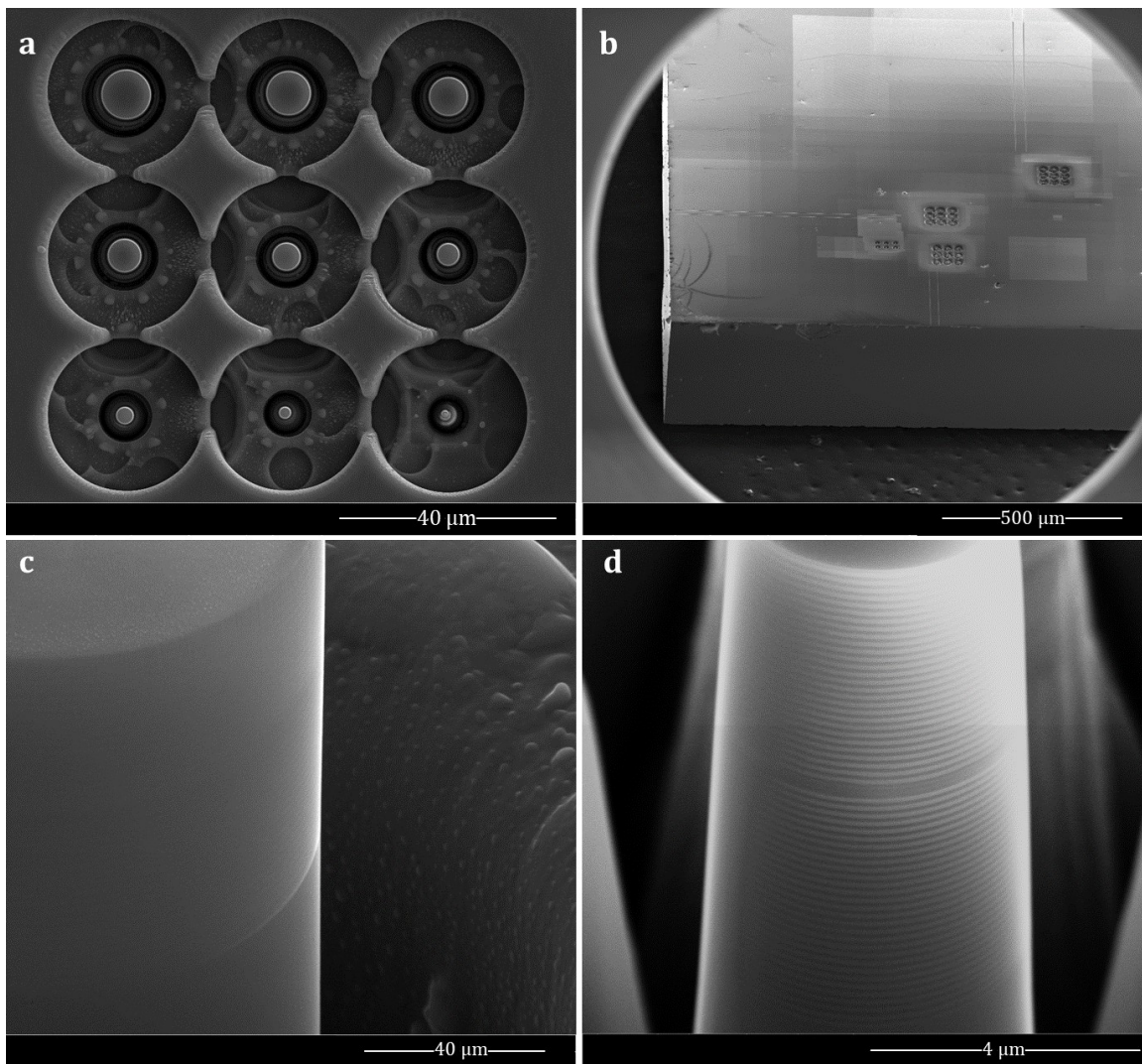
2.4 MIKROSTRUKTURYZACJA PRÓBEK MIKROWNĘKOWYCH ZA POMOCĄ SKUPIONEJ WIĄZKI JONÓW GALOWYCH

Część badań wymagała mikrostrukturyzacji badanej próbki. Do tego celu posłużono się metodą suchego trawienia jonowego skupioną wiązką jonów. W metodzie tej wykorzystuje się sprzężony układ mikroskopowy z dwoma działami: jonowym emitującym strumień jonów galowych, powodujący wybicie atomów z próbki oraz elektronowym służącym przede wszystkim

do obserwacji powierzchni próbki, w tym do monitorowania postępów procesu trawienia. Wiązki elektronów oraz jonów skupione są za pomocą soczewek elektrostatycznych na powierzchni próbki. Technika *FIB* umożliwia wytworzenie dowolnie zdefiniowanych kształtów z rozdzielczością do kilkunastu nanometrów. Użycie małej wartości napięcia przyspieszającego jony, poniżej wartości progowej wybicia atomów, pozwala na wygenerowanie elektronów wtórnych, które mogą podobnie jak w przypadku mikroskopu elektronowego służyć do niedestruktywnego obrazowania powierzchni próbki.

2.4.1 WYTRAWIANIE MIKROFILARÓW METODĄ *FIB*

Cylindryczne mikrofilary, które zostały użyte do badań w rozdziałach 4.6 i 4.7 wytrawiono z mikrownęki planarnej poprzez trawienie metodą suchego trawienia jonowego *FIB*. Wartość napięcia przyspieszającego jony stosowana w procesach trawienia to 30 kV, a natężenie zmieniano w zakresie od 50 pA do 5 nA. Wieloetapowa procedura trawienia użyta w niniejszej pracy składa się ze wstępnego wycięcia dziewięciu mikrofilarów o tej samej średnicy w konfiguracji 3×3 , używając dużych wartości natężenia i następnym stopniowym zmniejszaniu ich średnicy aż do oczekiwanego rozmiaru jak pokazano na rysunku 2.4.1 a. Dodatkowo, w celu łatwiejszego znalezienia struktur w układach spektroskopowych wytrawiane są ścieżki wskazujące miejsce trawienia (rysunek 2.4.1 b). Użycie stosunkowo dużej wartości natężenia powoduje znaczne zniszczenie powierzchni bocznej mikrofilarów w wyniku utworzenia amorficznej warstwy materiału przy powierzchni. Kolejne etapy trawienia przy użyciu mniejszych wartości natężenia prądu mają na celu zredukowanie średnicy mikrofilara do oczekiwanych rozmiarów oraz wygładzenie jego powierzchni. Wygładzenie to ma na celu możliwie największe zredukowanie rozprożeń fotonów na powierzchniach bocznych mikrofilara. Zbliżenie na powierzchnię boczną wygładzonej struktury zostało zaprezentowane na rysunku c. Przykładowy wytrawiony mikrofilar o średnicy 5 μm zaprezentowano na rysunku 2.4.1 d.



Rysunek 2.4.1: Zdjęcia *SEM* uzyskane po procesie trawienia przedstawiające otrzymane struktury fotoniczne. Na zdjęciach prezentowana jest próbka z pojedynczą studnią kwantową CdSe. **a** Seria mikrofilarów o różnej średnicy (widok z góry). **b** Serie wytrawionych mikrofilarów wraz z liniami pomagającymi w lokalizacji wytrawionych struktur w eksperymentach optycznych **c** Zbliżenie na powierzchnię boczną wygładzonego mikrofilara. **d** Przykładowy wytrawiony mikrofilar o średnicy $5\ \mu\text{m}$.

Most technological advances in our life now come from serendipitous discoveries. That is a contraction of rocket technology and computer technology and atomic clock technology.

— Serge Haroche

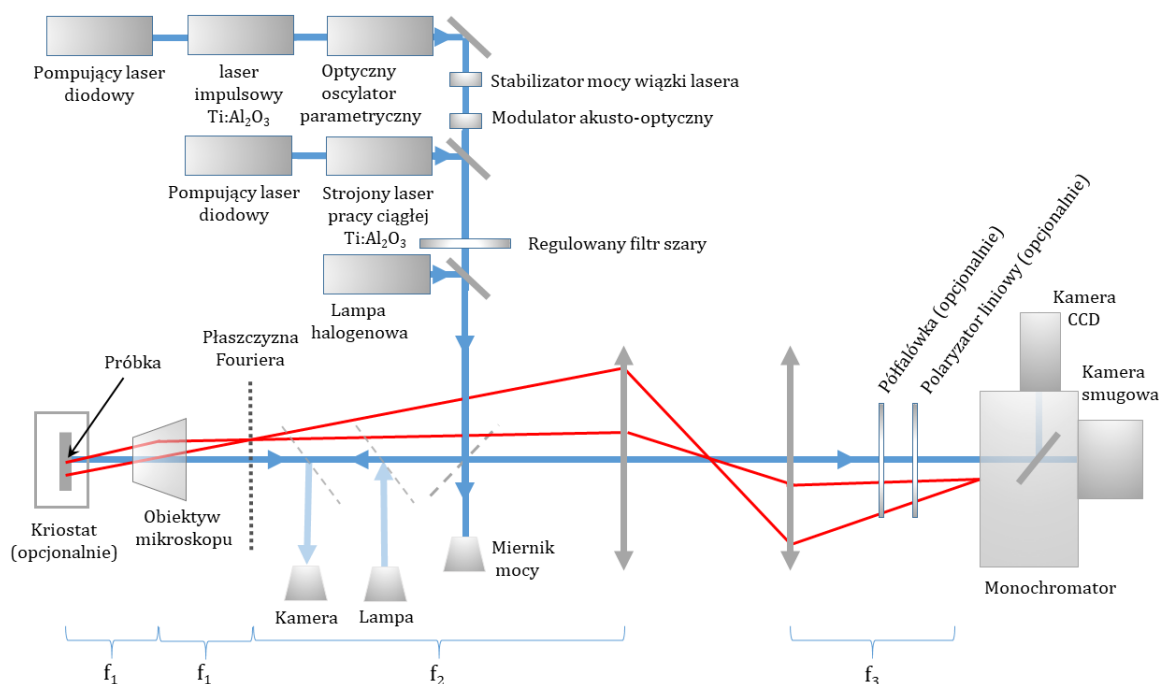
Serge Haroche, 2012 Physics Nobel Prize

3

Układy pomiarowe oraz zastosowane techniki spektroskopowe

Wyniki spektroskopowe prezentowane w niniejszej pracy otrzymano przy zastosowaniu układów eksperymentalnych znajdujących się w Laboratorium Ultraszybkiej Magnetospektroskopii (LUMS) Wydziału Fizyki Uniwersytetu Warszawskiego.

Poszczególne eksperymenty prezentowane w tej pracy wymagały zastosowania różnych układów pomiarowych, jednakże ogólny schemat układu pomiarowego w każdym przypadku był podobny. Został on zaprezentowany na rysunku 3.0.1. Elementy układu zostały omówione w kolejnych podrozdziałach.



Rysunek 3.0.1: Ogólny schemat układu eksperymentalnego wykorzystywanego podczas pomiarów spektroskopowych. Poszczególne elementy układu zostały omówione w tekście.

3.1 POMIARY NISKOTEMPERATUROWE I WYSOKOTEMPERATUROWE

W celu zredukowania wpływu wzbudzeń termicznych na badane efekty polarytonowe część eksperymentów została przeprowadzona w niskich temperaturach w zakresie 1.5-10 K. W zależności od wykorzystywanego układu pomiarowego używano jednego z trzech kriostatów: *Oxford Spectromag 4000*, w którym próbka umieszczona była w nadciekłym helu, przepływowego *Janis ST-500* oraz przepływowego z zamkniętym obiegiem helu firmy *ARS*. Uchwyt na próbkę pierwszego z wymienionych kriostatów wyposażony był w soczewkę o krótkiej ogniskowej (3,5 mm) umieszczoną na zmotoryzowanym przesuwie firmy *Attocube* mogąym pracować także w niskich temperaturach. Umożliwiał on wybór badanego miejsca na próbce z dokładnością do 10 nm, jak również zapisanie badanej pozycji na próbce. W kriostatach przepływowych próbki znajdują się w komorze próżniowej połączonej miedzianym elementem (tzw. zimnym palcem) z częścią układu, przez którą przepływa ciekły hel. Pozwala to na wydajne odebranie ciepła

od badanej próbki, a co za tym idzie schłodzenie jej do niskiej temperatury. W kriostatach przepływowych dla zapewnienia dobrego kontaktu termicznego próbka przyklejana była za pomocą pasty srebrnej do miedzianego elementu. W przypadku układu, w którym eksperyment prowadzony był w warunkach nadciekłego helu, próbkę umieszczono na aluminiowym elemencie przykręconym do tytanowej obudowy. Eksperymenty w temperaturze pokojowej zostały przeprowadzone z próbką zamontowaną na uchwycie bezpośrednio na osi optycznej układu pomiarowego bez wykorzystania kriostatu oraz komory próżniowej.

3.1.1 ŹRÓDŁA ŚWIATŁA

Wszystkie eksperymenty prezentowane w niniejszej pracy prowadzone były w konfiguracji odbiciowej tzn. sygnał emitowany przez próbkę wracał współliniowo z wiązką światła padającego i był kierowany do spektrometru. W zależności od rodzaju przeprowadzanego eksperymentu jako źródła światła używano trzech typów emiterów.

Do pomiarów odbicia użyto lampy halogenowej z włóknem wolframowym umieszczonej w pudełku z małą aperturą. Wiązka światła po wyjściu z pudełka kolimowana była za pomocą dwóch soczewek skupiających, a następnie powstałą równoległą wiązkę kierowano na oś optyczną za pomocą kostki światłodzielącej. Tego typu termiczne źródła światła charakteryzują się szerokim zakresem spektralnym pokrywającym się z zakresem, na który projektowane są mikrownęki badane w niniejszej pracy. Dzięki temu są odpowiednie do wstępnej charakteryzacji mikrownęk za pomocą pomiaru odbicia.

W pomiarach luminescencyjnych jako źródła światła zastosowano dwa różne typy laserów - impulsowe oraz lasery pracy ciągłej. Pierwsze z nich to tytanowo-szafirowe lasery impulsowe *Coherent Mira 900* oraz *Coherent Mira HP* o częstotliwości repetycji 80 MHz, strojone w zakresie od 710 nm do 880 nm. Jako laser pompujący w tych układach zastosowano odpowiednio lasery diodowe *Coherent Verdi V10* oraz *Coherent Verdi V18*. Laser *Coherent Mira HP* posiada dwie wnęki, które umożliwiają przełączanie między dwoma trybami pracy: piko- oraz femtosekundowym. W eksperymentach z pobudzaniem nierezonansowym konieczne było użycie lasera o energii wykraczającej poza zakres strojenia dostępnego lasera

tytanowo-szafirowego. W tym celu światła emitowanego z lasera *Coherent Mira HP* użyto do pompowania optycznego oscylatora parametrycznego *Coherent OPO*, który pozwala na stosunkowo łatwe strojenie długości fali emitowanej wiązki w zakresie 500 nm do 700 nm. Lasery impulsowe zostały zastosowane w badaniu efektów nieliniowych oraz dynamiki polarytonów. Do pobudzania luminescencji użyto lasera tytanowo-szafirowego pracy ciągłej pompowanego przez diodę laserującą i strojonego za pomocą zautomatyzowanej śruby zmieniającej pozycję kryształu nieliniowego, w zakresie od 720 nm do 800 nm z krokiem ok. 0,15 nm. Do części pomiarów fotoluminescencji używano laserów diodowych *LightHUB* firmy *Omicron*. Składał się on z zestawu modułów laserujących emitujących światło o długości fali: 405 nm, 445 nm, 515 nm, 532 nm, 685 nm oraz 808 nm sprzężonych z jednym światłowodem.

Stała w czasie intensywność wiązki laserów impulsowych zapewniana była przez komercyjny stabilizator mocy (tzw. *noise eater*), w którym jako element aktywny zastosowany został modulator ciekłokrystaliczny. Urządzenie to składa się z dwóch części: analizatora sprawdzającego moc wiązki padającej i stabilizatora regulującego moc wiązki wychodzącej na podstawie informacji otrzymanej z analizatora. Dzięki temu fluktuacje mocy lasera w czasie nie wpływały na gęstość mocy wiązki docierającej do próbki. W celu ograniczenia efektów związanych z nagrzewaniem próbki liczba impulsów z wiązki pobudzającej docierających do próbki w jednostce czasu była redukowana za pomocą modulatora akustyczno-optycznego. Urządzenie to odchyła wiązkę lasera w zadanym cyklu, zachowując stałą średnią gęstość mocy lasera pobudzającego. Wyzwalające impulsy prostokątne o częstotliwości 20 kHz i czynnika wypełnienia 1% podawane były za pomocą zewnętrznego generatora. Moc wiązki pobudzającej regulowana była przez filtr szary, a ustawiony w transmisji przez kostkę światłodzielną miernik mocy pozwalał na jej monitorowanie podczas całego eksperymentu.

Wiązka lasera skupiana była na powierzchni próbki w zależności od wybranego układu za pomocą obiektywu mikroskopowego *Mitutoyo M Plan Apo NUV HR* o aperturze numerycznej 0,65 i ogniskowej 4 mm (w układach przepływowych) lub soczewki asferycznej o ogniskowej 3,1 mm i aperturze numerycznej 0,68 (w układzie pompowanego helu). Wiązka lasera skupiana była na obszarze o średnicy ok. 1-2 μm . Światło wyemitowane lub odbite od próbki wracało współliniowo z wiązką pobudzającą i kierowane było w stronę detektora. Aby uniknąć nasycenia

detektorów przez rozproszone światło lasera, w części eksperymentów przed detektorem umieszczony był polaryzator przepuszczający liniową polaryzację ortogonalną do polaryzacji wiązki pobudzającej, a także spektralny filtr górnoprzepustowy.

3.2 MONOCHROMATOR ORAZ KAMERA Z MATRYCĄ CCD

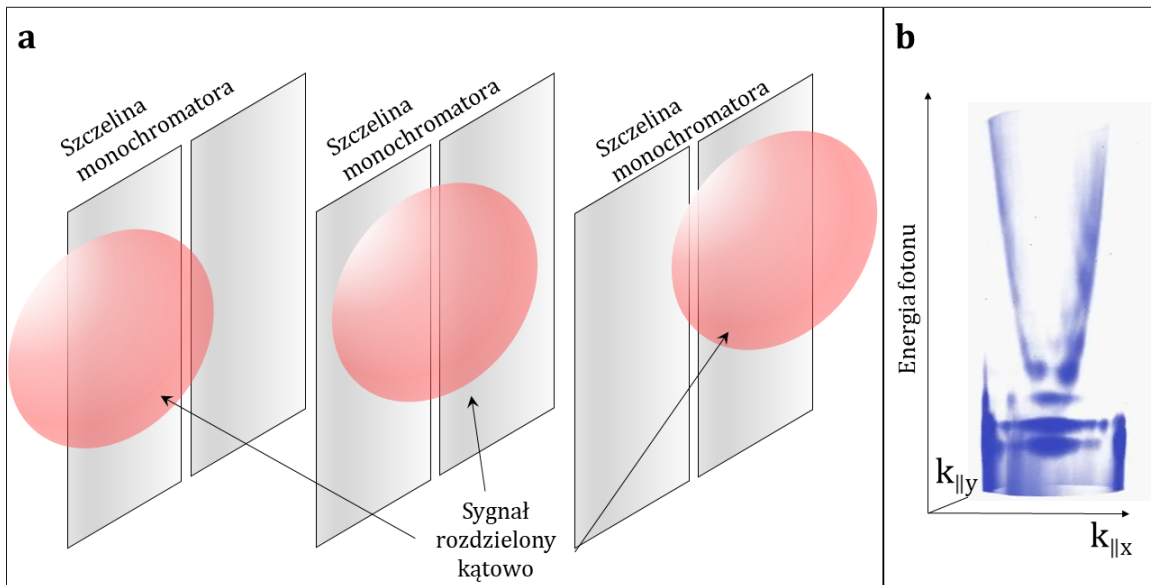
Sygnał był analizowany spektralnie przy użyciu monochromatorów *Andor Shemrock* sprzężonych z kamerą wyposażoną w matrycę CDD (ang. *Charge Coupled Device*) typu *Andor Newton*. W modelach tego typu matryca o rozdzielczości 1024 x 256 pikseli chłodzona jest za pomocą ogniwa Peltiera. Elementem dyspersyjnym w monochromatorze była siatka dyfrakcyjna o gęstości 1200 rys na milimetr.

3.2.1 DETEKcja Z ROZDZIELCZOŚCIĄ POLARYZACYJNĄ

Pomiary z rozdzielczością polaryzacyjną zostały wykonane z użyciem polaryzatora liniowego oraz płytki falowej umieszczonej przed soczewką skupiającą sygnał na szczelinie wejściowej monochromatora (rysunek 3.0.1). Polaryzator został zamontowany na osi optycznej w taki sposób, żeby kierunek polaryzacji był zgodny z kierunkiem rys siatki dyfrakcyjnej monochromatora. Przed polaryzatorem została umieszczona półfalówka na zmotoryzowanym uchwycie pozwalającym na zmianę kąta obrotu płytki względem kierunku polaryzacji polaryzatora liniowego. Pomiar natężenia światła w funkcji kąta obrotu półfalówki dostarcza informacji na temat polaryzacji liniowej analizowanego sygnału.

3.2.2 OBRAZOWANIE PRZESTRZENI RZECZYWISTEJ, PRZESTRZENI PĘDÓW FOTONU, ORAZ MAPOWANIE (TOMOGRFIA) PRZESTRZENI PĘDÓW FOTONU

W celu uzyskania obrazu przestrzeni rzeczywistej równoległa wiązka wychodząca z obiektywu mikroskopowego skupiana była na kamerze CCD za pomocą soczewki. Natomiast do obrazowania przestrzeni pędów fotonów zastosowany został zestaw dwóch soczewek umożliwiający obrazowanie składowej pędu fotonu równoległej do płaszczyzny próbki, czyli



Rysunek 3.2.1: **a** Schematycznie przedstawiona idea mapowania przestrzeni pędów. Ilustracje przedstawiają schematycznie kolejne pozycje wiązki sygnału względem szczeliny monochromatora. **b** Przykładowy wynik pomiaru tomografii przedstawiający dyspersję pędu fotonu opuszczającego mikrownękę w funkcji składowych jego pędu w płaszczyźnie próbki $k_{||x}$ i $k_{||y}$.

płaszczyzny Fouriera (rysunek 3.0.1). Uzyskany w ten sposób obraz może być interpretowany jako zależność dyspersyjna sygnału.

Analiza sygnału z wykorzystaniem siatki dyfrakcyjnej wymaga poświęcenia jednego wymiaru przestrzennego lub pędowego badanego obrazu płaszczyzny Fouriera w celu uzyskania wymiaru spektralnego.

W celu odwzorowania pełnej przestrzeni pędów zawierającej składowe w płaszczyźnie próbki wektora falowego fotonu $k_{||x}$ oraz $k_{||y}$ z rozdzielczością spektralną konieczne było zastosowanie mapowania przestrzeni pędów. Taką tomograficzną mapę uzyskuje się, przesuwając obraz płaszczyzny Fouriera po szczelinie monochromatora za pomocą soczewki zamontowanej na zmotoryzowanym przesuwie z krokiem $50 \mu m$, tak jak zostało to zaprezentowane schematycznie na rysunku 3.2.1 **a**. Ruch soczewki odbywa się w kierunku prostopadłym do osi

optycznej szczeliny. Rekonstrukcja trójwymiarowego obrazu uzyskanego z kolejnych widm, zarejestrowanych dla różnych pozycji soczewki pokazana została na rysunku 3.2.1 **b**.

3.2.3 MAPOWANIE PRZESTRZENNE PRÓBK

Wszystkie próbki prezentowane w tej pracy wytworzone zostały z gradientem grubości warstw. W związku z tym różne miejsca na próbce wykazują różne właściwości fotoniczne. W szczególności zmienia się długość fali światła tworzącego falę stojącą wewnątrz mikrownęki. Aby uzyskać informację o sile oddziaływania między modem mikrownęki a emitерem wykorzystano mapowanie fotoluminescencji i odbicia. Umożliwił to zautomatyzowany przesuw, na którym zamontowany był obiektyw mikroskopowy.

3.2.4 POMIARY WZBUDZENIA FOTOLUMINESCENCJI (PLE)

W badaniach relaksacji polarytonów między gałęziami polarytonowymi zastosowano metodę wzbudzenia fotoluminescencji (*ang. PhotoLuminescence Excitation, PLE*). Metoda ta opiera się na rejestracji serii widm emisyjnych w funkcji energii lasera pobudzającego. W pomiarze PLE uzyskuje się informację o energii stanów absorbujących jak w przypadku spektroskopii absorpcyjnej, jak również niesie ona informację o kanałach transferu wzbudzenia do monitorowanego emitującego stanu. Jest to technika szczególnie przydatna w przypadku próbek, które są nieprzezroczyste w badanym zakresie spektralnym. Jako źródło pobudzania został wykorzystany laser tytanowo-szafirowy pracy ciągłej strojony za pomocą zautomatyzowanej śruby zmieniającej pozycję kryształu nieliniowego, w zakresie od 720 nm do 800 nm (szczegóły dotyczące lasera opisano w podrozdziale 3.1.1). Eksperyment przeprowadzono w temperaturze 8 K w kriostacie przepływowym pracującym w obiegu zamkniętym i wykorzystującym ciekły hel jako ciecz kriogeniczną.

3.2.5 POMIARY DYNAMIKI EMISJI

Procesy badane w niniejszej pracy charakteryzują się stałymi czasowymi do kilkuset pikosekund. W celu zbadania dynamiki emisji z badanych próbek niezbędne było zastosowanie

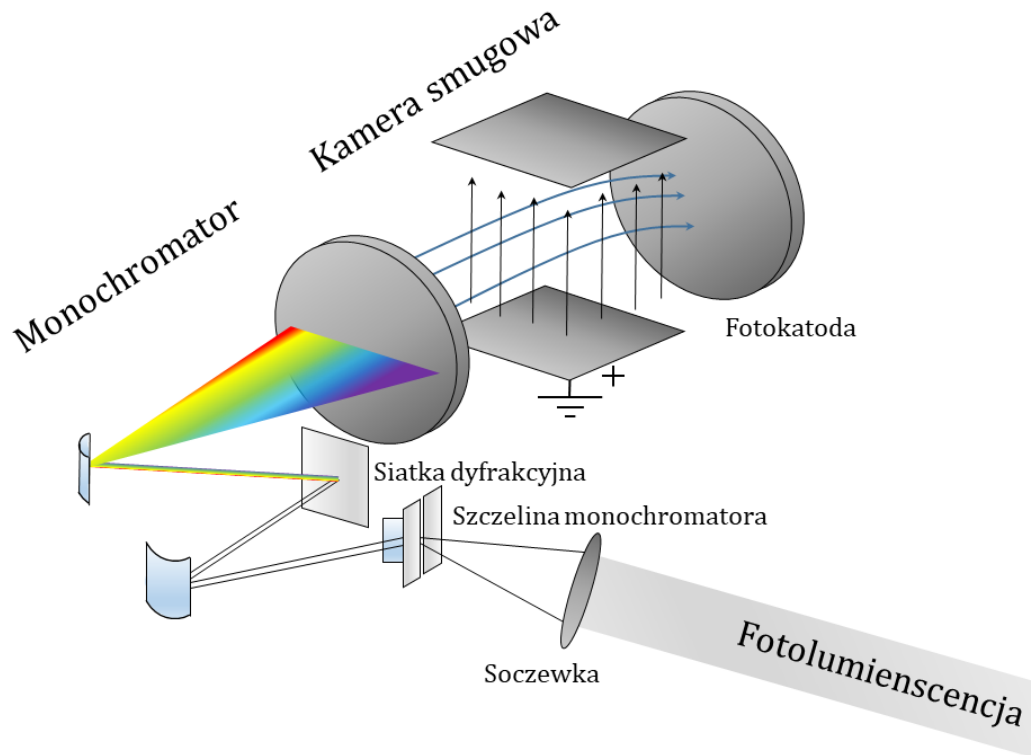
szybkiego detektora. Do eksperymentów wybrano kamerę smugową firmy *Hamamatsu* z fotokatodą *S20* pracującą w zakresie widzialnym. Ten system obrazowania jest używany w pomiarach ultraszybkich, dlatego stosowany wraz z laserami impulsowymi, takimi jak przedstawione w rozdziale 3.1.1. Układ zastosowany w niniejszej pracy pozwala na osiągnięcie rozdzielczości czasowej do kilku ps.

Kamera smugowa przekształca zmienny w czasie sygnał w profil przestrzenny, co następnie można zwizualizować za pomocą mapy intensywności w funkcji czasu i pozycji (lub energii). Operacja ta schematycznie została zaprezentowana na rysunku 3.2.2. Układ składa się ze szczeliny poprzedzającej fotokatodę, która przekształca pewną liczbę fotonów w określoną liczbę elektronów. Wydajność konwersji fotonów na elektrony wynika ze sprawności samej fotokatody. Następnie wiązka elektronów odchylana jest za pomocą dwóch elektrod ustawionych za szczeliną. Na końcu tuby umieszczona jest fotokatoda i ekran fosforowy (CCD), który odbiera odchylone elektrony.

Na elektrodach wysyłany jest sygnał przemiatania, zsynchronizowany z laserem wyzwalającym. Elektrony przechodzące przez elektrody w różnym czasie odchylane są pod różnymi kątami w kierunku prostopadłym do szczeliny. Zatem na ekranie przestrzenne położenie maksimów jest podane w kierunku równoległym do szczeliny, podczas gdy kierunek prostopadły do szczeliny odzwierciedla ich współrzędne czasowe, zachowując ich względną intensywność.

Schemat działania kamery smugowej przedstawiono na rysunku 3.2.2. Idea eksperymentu opiera się na pomiarze natężenia i energii emisji w funkcji czasu od momentu wzbudzenia emisji za pomocą impulsu lasera.

Do pobudzania emisji w tym przypadku użyto pikosekundowych lub femtosekundowych impulsów pochodzących z laserów omówionych w podrozdziale 3.1.1. Kamera smugowa była zsynchronizowana z laserem za pomocą układu elektronicznego przetwarzającego sygnał z fotodiody, na którą padała mała część wiązki lasera pobudzającego. W celu uzyskania rozdzielczości spektralnej emitowane światło było rozszczepiane za pomocą monochromatora *Acton SpectraPro* firmy *Princeton Instruments* z siatką dyfrakcyjną 1200 rys na milimetr.



Rysunek 3.2.2: Rysunek obrazujący schemat działania kamery smugowej.

3.3 PODGLĄD POWIERZCHNI PRÓBKKI

W celu kontroli skupienia światła na powierzchni próbki stałym elementem układu była kamera z matrycą CCD, która pozwalała na kontrolę rozmiaru plamki lasera oraz jakości powierzchni próbki podczas wykonywanych pomiarów. Podgląd optyczny używany był również w celu lokalizowania wytrawionych mikrofilarów. Do podświetlenia próbki używano światła pochodzącego z diody LED emitującej poza zakresem spektralnym, w którym przeprowadzany był właściwy eksperyment. Światło emitowane przez diodę kierowano na oś optyczną za pomocą elementu światłodzielnego typu *Pellicle* firmy *Thorlabs* o stosunku odbicia do transmisji 8:92. Za pomocą drugiego identycznego elementu światłodzielnego ustawionego na osi optycznej część wracającego światła, odbitego od powierzchni próbki, kierowana była do kamery *Imaging Source 23UX236*. Matryca CCD była ochraniana przed intensywnym promieniowaniem lasera

przez filtr górnoprzepustowy. Zestaw do podglądu nie utrudniał przeprowadzania właściwych pomiarów i mógł działać podczas całego eksperymentu.

3.4 METODA WYZNACZANIA ENERGII GÓRNEJ GAŁĘZI POLARYTONOWEJ

Typowo w pomiarze odbicia w funkcji odstrojenia energii ekscytanu i modu można zaobserwować odpychanie się oddziałujących stanów wynikające z koherentnej wymiany energii między nimi. Oddziaływanie to prowadzi do powstania dwóch nowych stanów własnych nazywanych górną gałęzią polarytonową i dolną gałęzią polarytonową, co szerzej zostało omówione w rozdziale 1. Różnica energii między tymi stanami w warunkach rezonansu modu i ekscytanu jest równa wartości rozszczepienia Rabiiego $\hbar\Omega$. Jeśli wartość tego parametru jest większa niż szybkość zaniku ekscytanów studni kwantowej i fotonów uwięzionych we wnęce, system pracuje w warunkach silnego sprzężenia [11], natomiast, gdy tłumienie ekscytanu i modu jest dominujące, system działa w warunkach słabego sprzężenia, w których efekty polarytonowe są zaniedbywalne. Wyznaczenie wartości $\hbar\Omega_R$ jest kluczowe dla charakteryzacji każdego układu operującego w warunkach silnego sprzężenia.

Eksperymentalnie wartość rozszczepienia Rabiiego wyznacza się najczęściej poprzez analizę pozycji energetycznych linii spektralnych górnej i dolnej gałęzi polarytonowej. W tym celu do widm odbicia lub luminescencji zarejestrowanych w funkcji odstrojenia między energią ekscytanu studni kwantowej i modu mikrownęki dopasowuje się krzywe pochodzące z modelu sprzężonych oscylatorów. [11]

W wysokiej jakości mikrownękach [30, 69–71], ze względu na szybką relaksację do dolnej gałęzi polarytonowej, górna gałąź polarytonowa jest często trudna lub wręcz niemożliwa do zaobserwowania w standardowych pomiarach fotoluminescencji, co znacząco utrudnia potwierdzenie warunków silnego sprzężenia oraz wyznaczenie kluczowych parametrów tego sprzężenia. W szczególności jednym z systemów materiałowych, w których występuje wspomniana trudność, są systemy ze studniami selenkowymi, którym poświęcony został rozdział 4.3.2 niniejszej pracy.

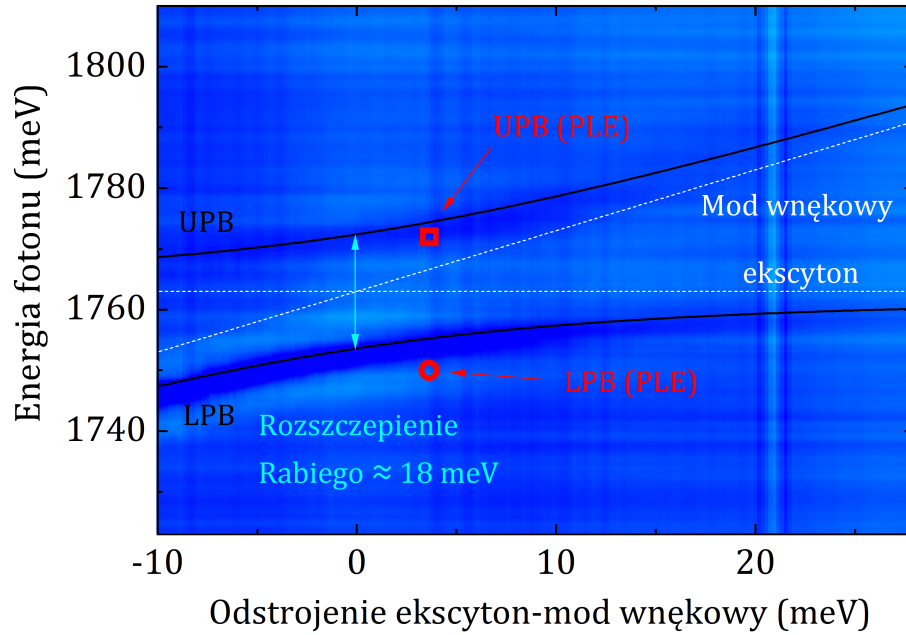
Alternatywna metoda, proponowana w tym rozdziale, pozwalająca na potwierdzenie

występowania silnego sprzężenia bazuje na pomiarze pobudzania fotoluminescencji (ang. *PhotoLuminescence Excitation, PLE*). W metodzie tej wynikiem pomiaru jest seria widm fotoluminescencji w funkcji energii lasera wzbudzającego. Na potrzeby tego eksperymentu układ wykorzystywany podczas pozostałych eksperymentów został uzupełniony o przestrajalny laser tytanowo-szafirowy pracy ciągłej pozwalający na płynną zmianę długości fali emitowanego światła w zakresie od 720 do 800 nm. Szczegóły układu pomiarowego przedstawione zostały na rysunku 3.0.1.

W celu prezentacji działania metody bazującej na PLE przygotowana została struktura mikrownękowa wykorzystująca zbliżony system materiałowy do struktury opisanej w rozdziale 4.3.2. Jednakże w celu zwiększenia wartości rozszczepienia Rabiego zastąpiono pojedynczą studnię kwantową supersiecią CdSe/(Cd,Mg)Se (patrz 1.1). Szczegóły dotyczące wzrostu tej struktury zostały przedstawione w rozdziale 2.3.2. W próbce wybranej do pomiarów wyjątkowo widoczna w odbiciu jest górna gałąź polarytonowa, co umożliwia weryfikację skuteczności metody bazującej na PLE. W wyniku relatywnie dużego rozszczepienia Rabiego w badanej próbce następuje wyraźna separacja górnego i dolnego polarytonu. Otwiera to możliwości badania właściwości emisyjnych systemu przy użyciu pobudzania rezonansowego z wyższym poziomem energetycznym.

Szereg widm odbicia zarejestrowanych w pomiarze niskotemperaturowym w 8 K dla kolejnych pozycji na powierzchni próbki wzdłuż gradientu grubości mikrownęki pokazano na rysunku 3.4.1. Prezentowana mapa odbicia pokazuje *anticrossing* linii spektralnych, co sugeruje wystąpienie silnego sprzężenia światło-materia w badanej strukturze i pozwala na weryfikację skuteczności prezentowanej metody. Minima odbicia tworzą na mapie linie, które z dużą zgodnością są odwzorowane przez symulację za pomocą modelu dwóch sprzężonych oscylatorów. Pomiar ten pozwala na określenie rozszczepienia Rabiego jako $\hbar\Omega_R = 18 \pm 2 \text{ meV}$.

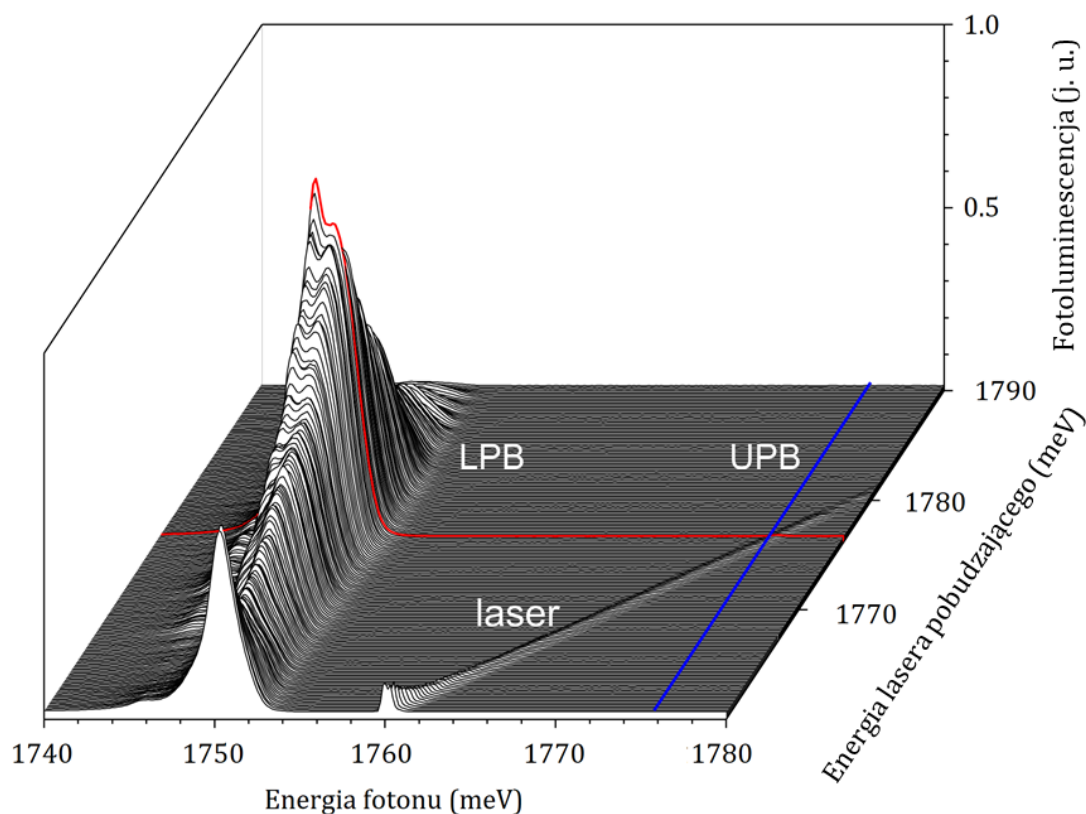
Na podstawie widm mikrofotoluminescencji zarejestrowanych w funkcji energii lasera pobudzającego zaprezentowanych na rysunku 3.4.2 można zauważyć, że emisja z dolnej gałęzi polarytonowej (w energii 1750 meV) jest wzmocniona, gdy energia wzbudzenia jest dostrojona do energii górnej gałęzi polarytonowej około 1760 meV. Wskazuje to na efektywną relaksację międzygałęziową polarytonów. Precyzyjne wyznaczenie energii górnej gałęzi polarytonowej



Rysunek 3.4.1: Widma odbicia zmierzone w funkcji odstrojenia ekscyton-mod wnąkowy dla $k_{\parallel} = 0$ w temperaturze 8 K. Białe przerywane linie wskazują energie nieoddziałujących ekscytonów i modu wnąkowego. Czarne ciągłe linie reprezentują zasymulowany przebieg linii dolnej (LPB) i górnej (UPB) gałęzi polarytonowej. Na podstawie dopasowania modelu sprzężonych oscylatorów wyznaczono wartość rozszczepienia Rabiego na poziomie 18 ± 2 meV. Czerwonymi punktami zaznaczono pozycje dolnej i górnej gałęzi polarytonowej uzyskane z pomiaru pobudzania fotoluminescencji (PLE).

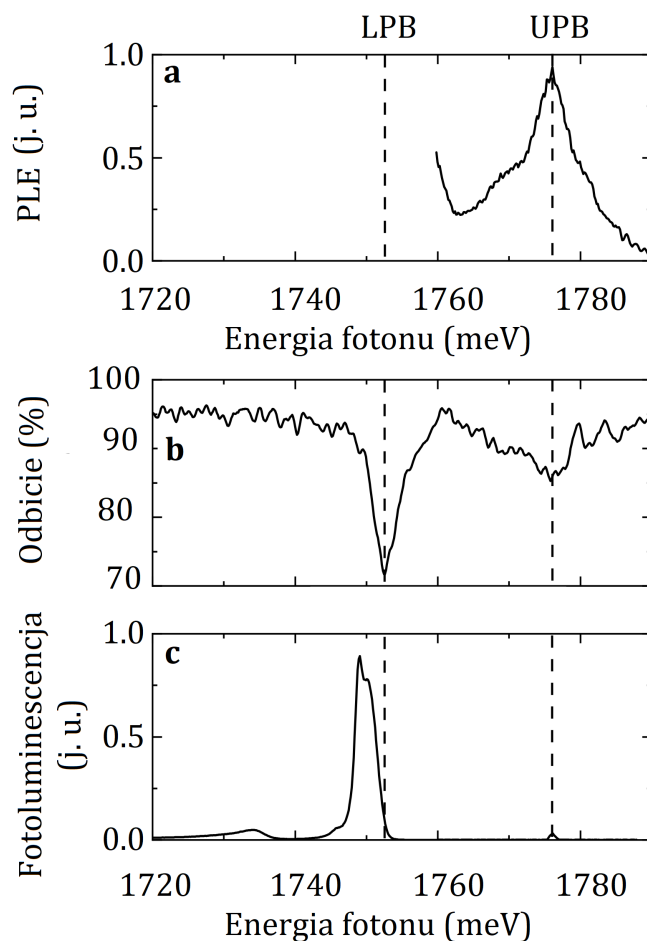
wymaga wykonania kilku pomiarów dla różnych miejsc na próbce w celu odtworzenia zależności energii w funkcji odstrojenia modu fotonowego i ekscytonu studni kwantowej.

Na rysunku 3.4.3 porównano widmo odbicia, PLE i mikrofotoluminescencji pochodzące z tego samego obszaru próbki. Maksimum w energii 1776 meV jest dobrze widoczne na rysunku 3.4.3 a. Dwie szerokie linie spektralne w widmie odbicia widoczne na rysunku 3.4.3 b przy około 1752 meV i 1776 meV, przypisywane są odpowiednio dolnej i górnej gałęzi polarytonowej. Widmo fotoluminescencji na rysunku 3.4.3 c zawiera maksimum przy około 1750 meV reprezentujące emisję z dolnej gałęzi polarytonowej.



Rysunek 3.4.2: Widma fotoluminescencji w funkcji energii lasera pobudzającego. Pomiar został przeprowadzony w temperaturze 8 K. Czerwona krzywa wskazuje widmo z najwyższą intensywnością dolnej gałęzi polarytonowej. Wyraźne zwiększenie emisji z dolnej gałęzi polarytonowej następuje w przypadku dostrojenia energii lasera pobudzającego do energii górnej gałęzi polarytonowej. Niebieska linia wskazuje energię górnej gałęzi polarytonowej.

Widma przedstawione na rysunku 3.4.3 wskazują na zgodność energii górnej gałęzi polarytonowej uzyskanej z pomiaru odbicia i pomiaru PLE. Przesunięcie w niskie energie dolnej gałęzi w widmie μ -PL (rysunek 3.4.3 a) względem pomiaru odbicia (rysunek 3.4.3 c) interpretowane jest jako przesunięcie Stokesa. [72] Rysunek 3.4.3 pozwala również interpretować zwiększoną emisję z dolnej gałęzi, gdy energia wzbudzenia zbliża się do 1760 meV



Rysunek 3.4.3: Pomiary optyczne w temperaturze 8 K na próbce z supersiecią zawierającą osiem studni kwantowych CdSe. Porównanie widm **a** odbicia, **b** pobudzenia luminescencji, oraz **c** mikrofotoluminescencji pobudzonej nierezonansowo w energii 2066 meV, uzyskane w punkcie na próbce w przybliżeniu odpowiadającym rezonansowi energii ekscytynu i modu wewnętrznego.

odpowiadającej emisji niesprężonego ekscytynu jako bezpośrednie wzbudzenie dolnej gałęzi przez stany ekscytynu.

Przedstawiona metoda może być szczególnie użyteczna do określania parametrów sprężenia w mikrowędkach z warstwami dichalkogenów metali przejściowych [73, 74]

lub materiałami organicznymi, [75, 76], które charakteryzują się dużą wartością rozszczepienia Rabiego. W badanych mikrownękach, gdzie górna gałąź polarytonowa jest ledwo zauważalna w pomiarze fotoluminescencji i odbicia, ale relaksacja międzygałęziowa jest wydajna, wartość rozszczepienia Rabiego można ustalić na podstawie różnicy energii między maksimum absorpcji i emisji w pomiarze pobudzania fotoluminescencji. Na podstawie różnicy energii określono wartość rozszczepienia Rabiego 18 ± 2 meV. Przestrzenne mapowanie odbicia potwierdza uzyskaną wartość. Przedstawiona metoda jest przydatna do określania parametrów silnego sprzężenia w przypadku, gdy wartość rozszczepienia Rabiego jest duża, ale wysoki współczynnik dobroci mikrownęki wyklucza bezpośrednią obserwację górnego poziomu polarytonu przez fotoluminescencję lub odbicie.

Uniwersalność metody gwarantuje możliwość zastosowania jej nie tylko w badaniu struktur mikrownękowych opartych na materiałach II-VI. Przedstawiona metoda może być przydatna w wielu układach polarytonowych, takich jak mikrownęki bazujące na materiałach III-V, mikrownęki z dichalkogenkami lub organicznymi emiterami służącymi jako materiał aktywny. Ponadto może ona znaleźć zastosowanie w intensywnie rozwijającej się dziedzinie mikrosłupków ZnO, która reprezentuje jeden z wielu układów zawierających wielopoziomowe systemy polarytonowe, i w której informacja o wartości energii poszczególnych gałęzi polarytonowych ma istotne znaczenie.

Metoda ta może być szczególnie użyteczna w przypadkach, w których wartość rozszczepienia Rabiego jest wystarczająco duża, aby zapewnić skuteczną relaksację międzygałęziową z emisją fononu optycznego (25,9 meV w przypadku CdSe). Poprzednio międzygałęziowa relaksacja polarytonów wspomagana emisją fononu była opisywana mikrownękach III-V pompowanych optycznie lub elektrycznie. [77–79]

*Evidently, God not only plays dice but plays blind-folded,
and, at times, throws them where you can't see them.*

— Stephen Hawking

4

Efekty laserowania z mikrownęki zawierającej pojedynczą studnię kwantową CdSe/(Cd,Mg)Se

W poniższym rozdziale przedstawione zostały badania efektów laserowania w emisji z pułapek fotonicznych w strukturze mikrownęki optycznej na bazie selenków i tellurków z pojedynczą studnią kwantową CdSe/(Cd,Mg)Se. Właściwości wybranego do niniejszego studium, niezbadanego wcześniej materiału jako ośrodka aktywnego oraz odpowiednio zaprojektowana struktura mikrownęki pozwoliły na pierwszą obserwację trzech typów laserowania dla jednej struktury i wyznaczenie nieustalonej wcześniej, relacji między reżimami, w których występuje laserowanie. Jest to również pierwsza obserwacja nieliniowej odpowiedzi optycznej w reżimie silnego sprzężenia układu zawierającego pojedynczą studnię kwantową.

Ponadto, w tym rozdziale określono wpływ lokalizacji przestrzennej fotonu w strukturze półprzewodnikowej na efekty laserowania polarytonowego i fotonowego.

Mikrostrukturyzacja wynikała z obecności defektów powstałych spontanicznie na etapie wzrostu struktur lub została uzyskana poprzez intencjonalne wytworzenie mikrofilarów w procesie suchego trawienia jonowego. Dodatkowe ograniczenie przestrzenne prowadzi m.in. do wytworzenia potencjału lokalizującego fotony w kierunkach planarnych i wpływa na obniżenie progu laserowania [70].

Badania prezentowane w tym rozdziale realizowane były poprzez pomiary spektroskopowe rozdzielone kątowno, czasowo, polaryzacyjnie oraz przestrzennie na próbce omówionej w rozdziale 2.3.1.

4.1 MOTYWACJA PODJĘTYCH BADAŃ

W zależności od systemu materiałowego i zaprojektowanej struktury można oczekiwać różnych relacji między progiem laserowania polarytonowego, fotonowego wykorzystującego rekombinację ekscytonów oraz fotonowego wykorzystującego rekombinację niezwiązanych nośników w plazmie elektronowo-dziurowej. Jednakże zgodnie z warunkami omówionymi w rozdziale 1 niniejszej pracy laserowanie fotonowe zawsze wykazuje wyższy próg laserowania od laserowania polarytonowego. W ciągu kilkudziesięciu lat badań nad emisją koherentną ze struktur półprzewodnikowych opisywano jeden lub dwa reżimy laserowania dla danej struktury oraz dyskutowano relację między odpowiadającymi im progami laserowania [13, 15, 69–71, 80–94]. Wśród przytoczonych prac omawiających relację między progami laserowania polarytonowego i fotonowego można znaleźć takie, które wskazują na dwa rzędy wielkości wyższy próg laserowania fotonowego z rekombinacją ekscytonów [15, 69, 85, 87], natomiast w artykułach [88, 89] tylko dwa razy wyższy od progu laserowania polarytonowego. Przejście od laserowania fotonowego na ekscytonach do laserowania na plazmie elektronowo-dziurowej badane było z wykorzystaniem mikrownęk bazujących na ZnO [94] i wymagało zwiększenia mocy pobudzania o prawie rząd wielkości. Dokładna relacja między wszystkimi dostępnymi reżimami laserowania dla jednej struktury nie została jednak ustalona.

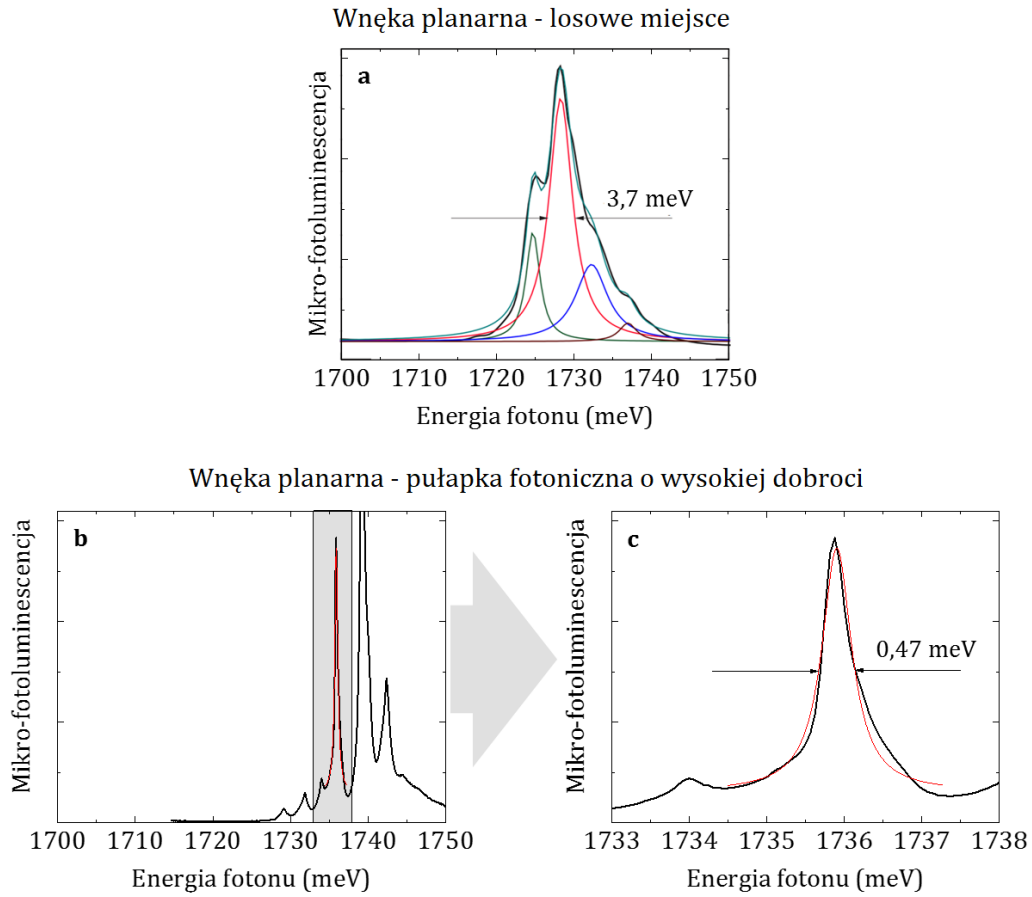
4.2 CHARAKTERYZACJA BADANEGO SYSTEMU

W wykorzystanych do produkcji struktury materiałach II-VI ze względu na większą niż w części badanych półprzewodnikach III-V siłę oscylatora ekscytonu można spodziewać się silniejszego sprzężenia światło-materia, a w konsekwencji możliwości badań w wyższych temperaturach i szerszym zakresie reżimów laserowania. Jednocześnie, struktury mikrownękowe wykonane z pierwiastków grup II-VI układu okresowego, których dotyczy niniejsza praca, często charakteryzują się obecnością niedoskonałości strukturalnych, które modyfikują ich właściwości emisyjne. Zjawisko, które w wielu aspektach utrudnia pracę z tymi materiałami, w tym przypadku jest atutem, ponieważ wprowadza dodatkowe ograniczenie przestrzenne dla fotonów w kierunkach prostopadłych do osi wzrostu mikrownęki, powodując lokalne zwiększenie jej dobroci [95]. W konsekwencji prowadzi to do obniżenia gęstości mocy progowej potrzebnej do zainicjowania laserowania.

Na rysunku 4.2.1 przedstawiono porównanie widm emisji dla dwóch różnych punktów na próbce. Widmo prezentowane na wykresie 4.2.1 **a** zostało zarejestrowane dla mikrownęki planarnej. Relatywnie szerokie maksimum jest sumą węższych linii o szerokości rzędu kilku meV każda. Ze względu na wynikającą, lokalnie niską dobroć wnęki ($Q \approx 470$) nie zaobserwowano laserowania w dostępnym zakresie mocy pobudzania dla tego miejsca.

Widmo 4.2.1 **b** przedstawia widmo emisji dla pozycji na próbce, w której nastąpiła dodatkowa lokalizacja światła w pułapce fotonicznej. Zmniejszenie szerokości linii spektralnej do 0,5 meV (patrz rysunek 4.2.1 **c**) związane jest z redukcją strat w wyniku dodatkowego ograniczenia przestrzennego powstałego naturalnie w wyniku obecności defektu strukturalnego. [95, 96] Lokalne zwiększenie dobroci wnęki (do $Q \approx 3700$) umożliwia obserwację efektów laserowania w warunkach słabego i silnego sprzężenia w zależności od warunków pobudzania.

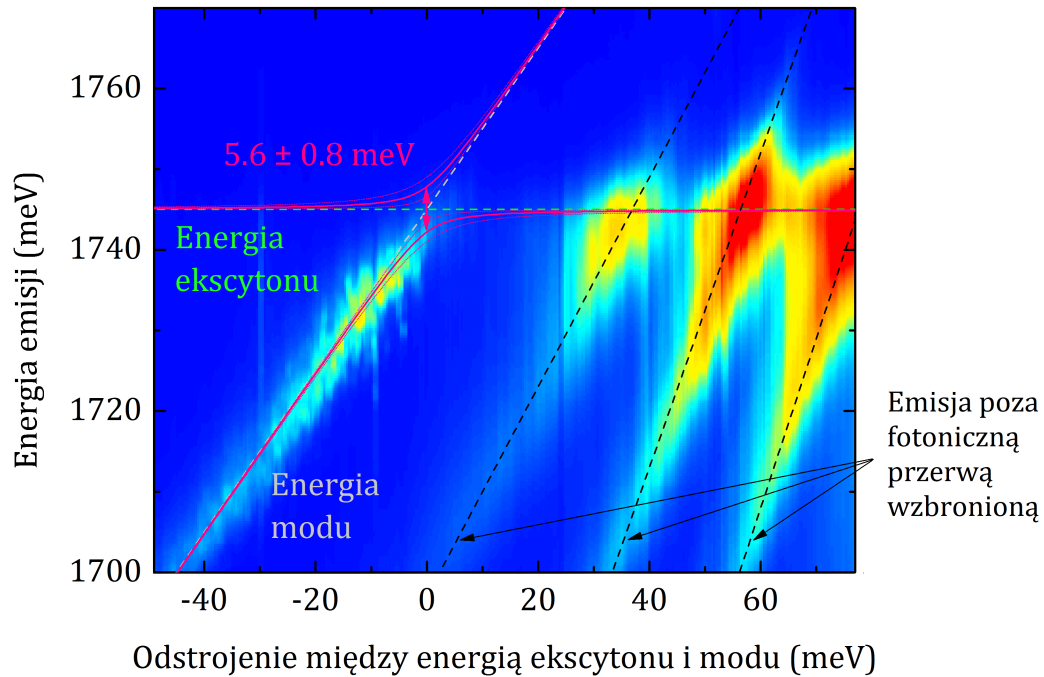
W celu potwierdzenia warunków silnego sprzężenia zarejestrowano widma emisji w funkcji odstrojenia między energią ekscytonu studni kwantowej i modu mikrownęki. Widma zebrano dla kolejnych miejsc na próbce wzdłuż odcinka o długości 5 mm równoległej do gradientu grubości mikrownęki. Wyniki przedstawiono w postaci mapy luminescencji



Rysunek 4.2.1: Widma fotoluminescencji planarnej mikrownęki dla ujemnego odstrojenia między energią studni kwantowej i modem mikrownęki: **a** dla losowo wybranej pozycji oraz **b** pułapki fotonicznej w temperaturze 8 K, gdzie defekty zapewniają wysoką dobroć wnęki. **c** zbliżenie na wybrany mod.

na rysunku 4.2.2. Pomiar prowadzono w temperaturze 8 K dla $k_{\parallel} = 0$. Ze względu na intencjonalnie wprowadzony gradient grubości mikrownęki zmiana miejsca pobudzania na próbce skutkuje zmianą energii modu mikrownękowego ok. 25 meV/mm.

Wzmocnienie zarejestrowanego sygnału widoczne w energii około 1745 meV dla kolejnych położeń na próbce wynika ze słabego sprzężenia emisji studni kwantowej z kolejnymi stanami w minimach odbicia sąsiadujących spektralnie z foniczną przerwą wzbronioną, dla

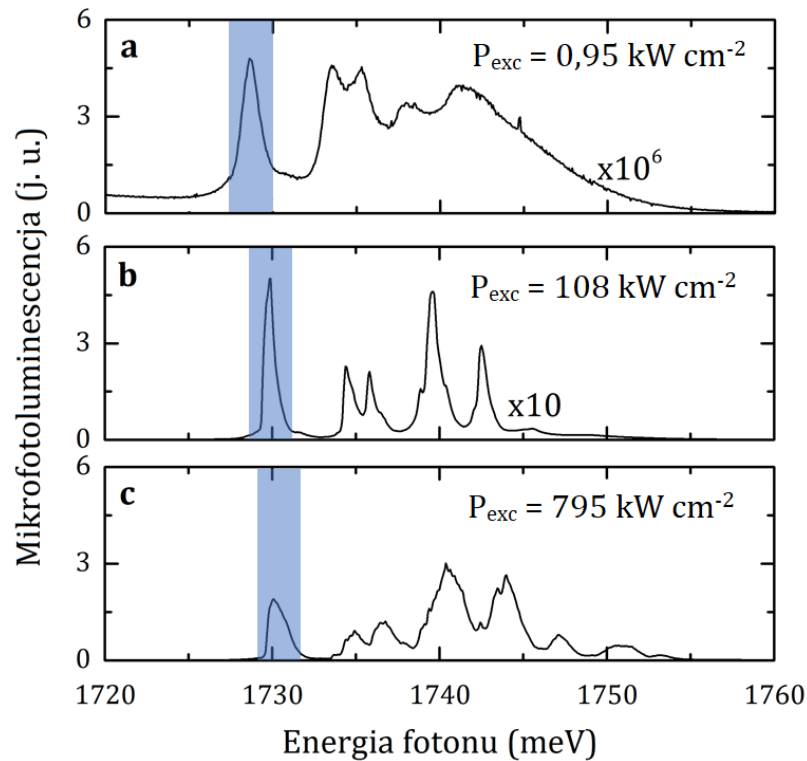


Rysunek 4.2.2: Mapa mikro-fotoluminescencji przedstawiająca widma zarejestrowane dla kolejnych miejsc na próbce w funkcji odstrojenia studni kwantowej i modu mikrownęki. Różowe ciągle linie reprezentują dopasowanie do dolnej i górnej gałęzi polarytonowej uzyskane przy wykorzystaniu modelu dwóch sprzężonych oscylatorów. Z dopasowania wyznaczono rozszczepienie Rabiego $5,6 \pm 0,8$ meV. Czarne przerywane linie wskazują emisję przez minima odbicia poza fotoniczną przerwą wzbronioną.

których gęstość modów optycznych jest zwiększona. Poza rezonansem emisja studni kwantowej nie jest widoczna ze względu na jej całkowitą filtrację przez fotoniczną przerwę wzbronioną górnego lustra Bragga mikrownęki. Emisja modu mikrownękowego przesuwają się spektralnie wraz ze zmianą położenia na próbce zgodnie z liniową zależnością. Przesunięcie modu wraz z pozycją na próbce odbiega jednak od zależności liniowej w pobliżu rezonansu z energią ekscytanu studni kwantowej. Dla rezonansu modu z ekscytanem następuje odepchnięcie poziomów energetycznych, czyli tzw. *anticrossing*, co wskazuje na silne sprzężenie ekscytanu studni kwantowej z modem mikrownękowym i powstanie dwóch modów polarytonowych. Emisja następuje z dolnej gałęzi polarytonowej poniżej energii niesprężonej studni, w przeciwieństwie do sytuacji słabego sprzężenia, gdzie maksimum emisji centrowane jest na ekscytanie. Brak emisji

z górnej gałęzi polarytonu przypisywany jest szybkiej relaksacji polarytonów w silnie sprzężonym systemie i jest dodatkową sugestią, że system pracuje w warunkach silnego sprzężenia. Zjawisko to jest typowe dla struktur II-VI i zostało szczerzej omówione w rozdziale 3.4 Dopasowanie do danych modelu dwóch sprzężonych oscylatorów [11] pozwala na wyznaczenie rozszczepienia Rabiego o wartości $5,6 \pm 0,8$ meV.

4.3 TRZY PROGI LASEROWANIA Z PUŁAPEK FOTONICZNYCH



Rysunek 4.3.1: Widma emisji z pułapek fotonicznych w wybranym punkcie na próbce dla różnych wartości gęstości pobudzenia **a** $0,95 \text{ kW cm}^{-2}$, **b** 108 kW cm^{-2} , **c** 795 kW cm^{-2} . Niebieskim obszarem został zaznaczony mod, dla którego została przeprowadzona analiza pokazana na rysunku 4.3.2.

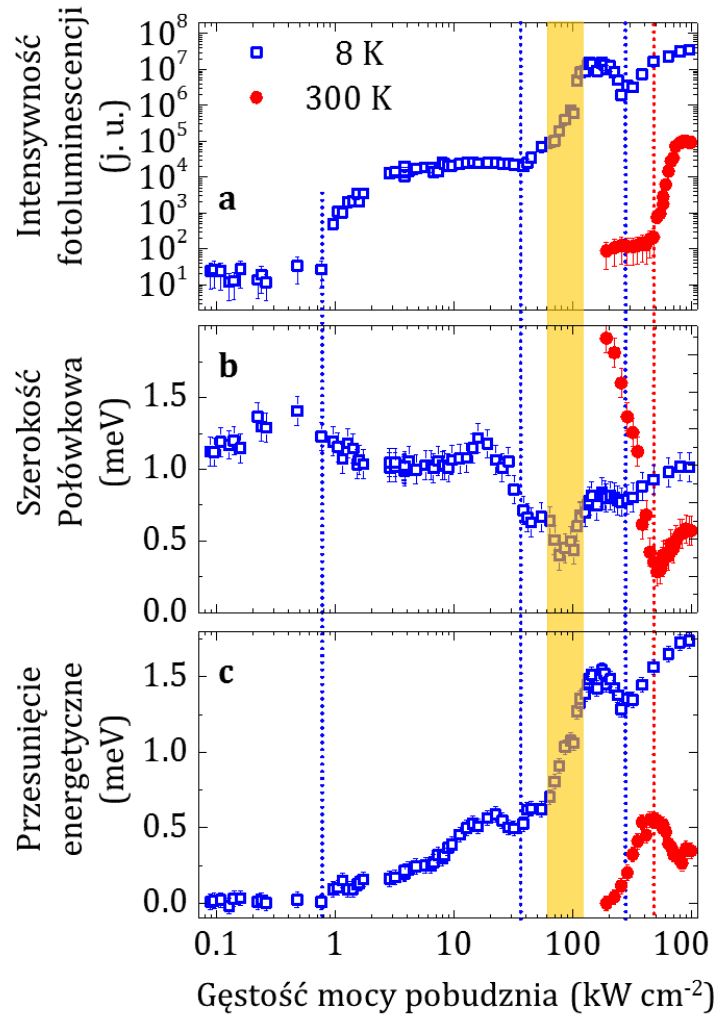
Przeprowadzono pomiar fotoluminescencji w temperaturze 8 K w punkcie

wykazującym znacznie silniejszą emisję w stosunku do losowo wybranych miejsc na próbce. Widmo w tym punkcie ujawnia złożoną strukturę składającą się z kilku linii emisyjnych.

Na rysunku 4.3.1 przedstawiono trzy widma zarejestrowane dla tego samego miejsca na próbce i różnych mocy pobudzenia: **a** $0,95 \text{ kW cm}^{-2}$, **b** 108 kW cm^{-2} , **c** 795 kW cm^{-2} . Prezentują one zmianę kształtu linii emisyjnych oraz przesunięcie ich wraz ze zmianą mocy lasera pobudzającego. Wyznaczona zależność intensywności od mocy pobudzenia w szerokim zakresie dla maksimum o najniższej energii pokazana na rysunku 4.3.2 **a** ujawnia nieliniowe zachowanie z trzema progami laserowania oddzielonymi regionami *plateau*. Pierwszy próg obserwowany jest przy gęstości mocy $0,75 \text{ kW cm}^{-2}$ ($12 \mu\text{W}$ mocy lasera skupionego na obszarze o średnicy $2 \mu\text{m}$), drugi przy 35 kW cm^{-2} , a trzeci przy 280 kW cm^{-2} , jak pokazano na rysunku 4.3.2 **a**.

Gęstość N_{exc} nośników wstrzykiwanych do studni kwantowej w pojedynczym impulsie wzbudzającym odpowiadającym pierwszemu progowi laserowania w temperaturze 8 K ($0,75 \text{ kW cm}^{-2}$) jest rzędu 10^9 cm^{-2} . Tak niska wartość pozwala zidentyfikować ten próg jako odpowiadający laserowaniu polarytonowemu, za które odpowiada wymuszone rozpraszanie polarytonów do stanu podstawowego. Należy zaznaczyć, że termin laserowanie polarytonowe używane jest tu, nawiązując do spójnej emisji światła w reżimie silnego sprzężenia z makroskopowo obsadzonego stanu podstawowego. W niniejszej pracy nierozróżniany jest przypadek termalizowanego kondensatu Bosego-Einsteina polarytonów [12, 13] i przypadek, w którym nie występuje pełna termalizacja.

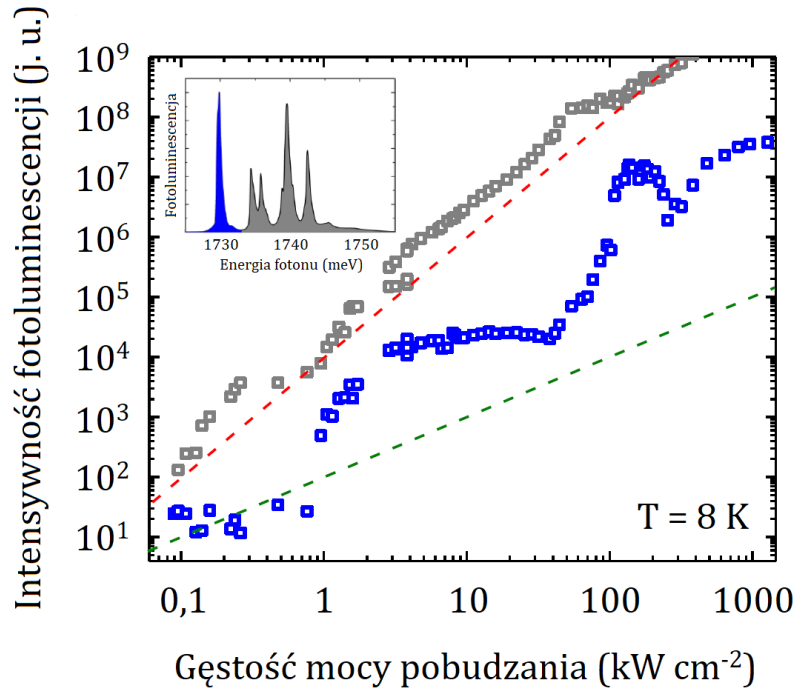
Wraz z rosnącą mocą lasera pompującego siła oscylatora ekscytonu, jak również koherencja w badanym układzie maleje. Wynika to ze zwiększonego udziału efektów ekranowania elektrostatycznego oraz rozpraszania ekscytonów. Przy wystarczająco dużej gęstości mocy pobudzenia powoduje to przejście od warunków silnego do słabego sprzężenia [15, 69, 85, 87–89]. Drugi próg laserowania przy gęstości mocy 35 kW cm^{-2} ($N_{exc} \approx 10^{11} \text{ cm}^{-2}$) należy więc przypisać wymuszonej emisji fotonów, gdzie wzmocnienie wynika z rekombinacji ekscytonów. Wynik ten jest porównywalny z wynikami poprzednich badań, w których wykazano, że próg laserowania w warunkach słabego sprzężenia jest obserwowany dla wartości o dwa rzędy wielkości większej niż wartość progowa laserowania polarytonowego [15, 85, 87]. Oszacowana na podstawie formuły Schmitta-Rinka [21] liczba



Rysunek 4.3.2: Zależność parametrów wybranego modu paupki fotonicznej od gęstości mocy pobudzania dla temperatury 8 i 300 K: **a** Zintegrowana intensywność, **b** szerokość linii i **c** przesunięcie energetyczne emisji dla 8 K (niebieskie kwadraty) oraz 300 K (czerwone kropki). Progi laserowania oznaczono przerywanymi pionowymi liniami. Moc, dla której gęstość wykreowanych w impulsie wzbudzających ekscytonów w studni kwantowej osiąga wartość przejścia Motta, zaznaczono żółtym pionowym paskiem. Ze względu na ograniczoną stabilność temperaturową układu w 8 K i 300 K badano inną paupkę fotoniczną. Słupki błędów odzwierciedlają niepewność dopasowania.

nośników potrzebna do uzyskania przejścia Motta w badanej studni kwantowej wynosi $N_S \sim 2,4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Dokładniejszy opis wyznaczania wartości nasycenia przedstawiono w dalszej części rozdziału 4.4. Gęstość nośników wstrzykiwanych w impulsie dla wartości odpowiadającej drugiemu progowi wynosi $N_{exc} \approx 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ i jest mniejsza od wartości nasycenia, co potwierdza, że obecność drugiego progu można przypisywać laserowaniu fotonowemu angażującemu związane kulombowsko pary elektron-dziura (ekscytyny). Przy dalszym zwiększaniu mocy pobudzania widoczne jest *plateau*, po którym obserwowany jest spadek wzmocnienia. Wynika on z osiągnięcia wartości nasycenia, przy której następuje dysocjacja ekscytynu. W miarę dalszego zwiększania gęstości wprowadzanych nośników następuje szybki, nieliniowy wzrost intensywności emisji dla gęstości mocy około 280 kW cm^{-2} (N_{exc} około 10^{12} cm^{-2}).

Sprawdzono, czy występuje konkurencja między modami, analizując sygnał pochodzący z modu podstawowego i pozostałych modów w funkcji gęstości mocy pobudzania (patrz rysunek 4.3.3). Zależność intensywności emisji od mocy pobudzania dla najniższego modu przyjmuje postać krzywej o nieliniowym charakterze z trzema progami. Natomiast zintegrowana intensywność pozostałych modów jest w przybliżeniu liniowa w początkowym zakresie i kwadratowa dla wyższych mocy pobudzania. Wynika stąd, że zmniejszenie intensywności emisji poniżej trzeciego progu nie wynika z konkurencji pomiędzy różnymi modami w próbce. W związku z tym spadek rejestrowanego sygnału obserwowany w okolicach 250 kW cm^{-2} przypisano dysocjacji ekscytonów zaangażowanych w emisję wymuszoną. Spadek wzmocnienia sugeruje, że efekty ekranowania kulombowskiego i oddziaływania wymiennego między ekscytonami stają się wystarczająco silne, aby wywołać częściową lub całkowitą dysocjację ekscytonów. Trzeci próg laserowania obserwowany jest dla liczby nośników wprowadzonej do studni kwantowej większej od wartości nasycenia, dlatego za obserwowany efekt odpowiedzialne jest laserowanie fotonowe polegające na stymulowanej rekombinacji niezwiązanych nośników, czyli plazmy elektronowo-dziurowej [97]. Dla temperatury 300 K gęstość mocy progowej (450 kW cm^{-2}) jest nieco wyższa, a całkowita intensywność emisji niższa (patrz rysunek 4.3.2 a) w porównaniu do pomiaru w 8 K. Różnicę tę przypisano zwiększonej szybkości procesów niepromienistych w wysokiej temperaturze. Rysunek 4.3.2 a wskazuje na to, że współczynnik β , opisujący wkład spontanicznej emisji do laserowania, jest różny dla każdego



Rysunek 4.3.3: Zależność zintegrowanej intensywności fotoluminescencji wybranej najniższej energetycznie linii (niebieskie kwadraty) i wszystkich pozostałych linii emisyjnych (szare kwadraty) od gęstości mocy pobudzenia dla temperatury 8 K. Wyznaczone słupki błędów są mniejsze niż rozmiar symbolu. Dodatkowo, dla porównania przedstawiono liniową (zielona przerywana linia) i kwadratową (czerwona przerywana linia) zależność. W lewym górnym rogu: przykładowe widmo emisji dla gęstości mocy pobudzenia 108 kW cm^{-2} z przedziałami całkowania wskazanymi za pomocą niebieskiego i szarego wypełnienia.

z trzech progów. Różnica ta wynika z jakościowo różnego mechanizmu zjawisk odpowiedzialnych za każdy z typów laserowania. Współczynnik β i wynikający z niego kształt krzywej intensywności w funkcji mocy pobudzenia może odbiegać od przypadku laserowania z wnęki planarnej, w sytuacji, gdy energia modu i związana z nią gęstość stanów przyjmuje dyskretne wartości wynikające z obecności pułapki fotonicznej.

Dla pomiaru w 8 K szerokość linii emisyjnej wynosząca 1 meV w przypadku pierwszego progu jest większa niż szerokość linii przy dwóch kolejnych, odpowiednio 0,6

i 0,75 meV. Wynika to z faktu, że szerokość spektralna linii emisyjnej w warunkach silnego sprzężenia jest definiowana przez wypadkową spektralnie szerokiej luminescencji studni kwantowej oraz wąskiego modu mikrownęki. W warunkach słabego sprzężenia emisja wykazuje charakter czysto fotoniczny, więc szerokość linii jest określana głównie przez szerokość spektralną modu wnękowego. Niewielkie poszerzenie przy trzecim progu wynika z defazowania w warunkach silnego pobudzenia.

Nieliniowy wzrost emisji na każdym z trzech progów występuje wspólnie z zawężeniem linii emisyjnej widocznym na rysunku 4.3.2 **b** oraz przesunięciem linii emisyjnej w stronę wyższych wartości energii (rysunek 4.3.2 **c**), które jest wyraźnie widoczne w przypadku dwóch progów związanych z laserowaniem fotonowym i znacznie słabsze w przypadku laserowania polarytonowego. Zmiana energii emisji w warunkach słabego sprzężenia jest przede wszystkim przejawem wpływu zwiększonej gęstości nośników na funkcję dielektryczną w warstwach tworzących mikrownękę. Niewielka wartość przesunięcia energetycznego w warunkach silnego sprzężenia może wynikać ze stosunkowo małej gęstości polarytonów przy wzbudzeniu gęstością mocy $0,75 \text{ kW cm}^{-2}$. Ponadto emisja zachodzi ze stanów związanych w pułapce fotonicznej, co determinuje dyskretne wartości energii modów wnękowych zaangażowanych w tworzenie polarytonu. Podobne zachowanie progowe z małym zwężeniem linii emisyjnej zostało wcześniej pokazane w badaniach laserowania polarytonowego przeprowadzonych na mikrofilarze wytrawionym z mikrownęki planarnej [85, 93].

4.4 GĘSTOŚĆ MOCY PROWADZĄCA DO DYSOCJACJI EKSCYTONU.

Zgodnie z teorią opisaną w publikacji [21] można założyć, że gęstość nasycenia ekscytonu, czyli gęstość mocy, przy której zachodzi przejście Motta dla ekscytonu (dysocjacja), można opisać wyrażeniem $N_S = 0,117/(\pi a_B^2)$, gdzie a_B jest promieniem Bohra ekscytonu. Takie założenie dobrze funkcjonuje w warunkach, gdy szerokość studni kwantowej jest większa bądź równa promieniowi Bohra ekscytonu tak jak w badanym przypadku. W celu określenia a_B przyjęto, że $E_b \times a_B = \text{const.}$, spójnie z [21, 69], gdzie E_b jest energią wiązania ekscytonu. Energia wiązania ekscytonu dla studni kwantowej CdSe/(Cd,Mg)Se o grubości 17 nm została oszacowana na 18 meV na podstawie publikacji [98, 99] oraz z uwzględnieniem wartości E_b dla

objętościowego kryształu E_b (CdSe) = 13 meV [100]. Promień Bohra ekscytynu w objętościowym kryształu CdSe wynosi a_B (CdSe) = 5,4 nm [101], natomiast dla ekscytynu związanego w studni kwantowej o szerokości około 10-20 nm a_B = 3,9 nm. Prowadzi to do wartości $N_S = 2,4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Wartość ta jest większa od N_S dla studni kwantowej GaAs (10^{10} cm^{-2} - 10^{11} cm^{-2}) [102, 103], co jest oczekiwane ze względu na większy promień ekscytynu Bohra w objętościowym GaAs (13 nm) niż w CdSe.

Liczba padających fotonów w pojedynczym impulsie wzbudzającym w przeliczeniu na 1 cm^2 próbki jest określana według wzoru: $N_{ph} = \eta P_{exc} / (E_{exc} f_{rep})$, gdzie $\eta = 0,01$ jest współczynnikiem wypełnienia wiązki lasera, P_{exc} jest gęstością mocy pobudzania na cm^2 , $E_{exc} = 2,1 \text{ eV}$ to energia wiązki lasera, a $f_{rep} = 76 \text{ MHz}$ to częstotliwość repetycji lasera impulsowego. Gęstość ekscytynów kreowanych w studni kwantowej w pojedynczym impulsie wzbudzającym to $N_{exc} = a N_{ph}$, gdzie a reprezentuje gęstość nośników, które efektywnie trafiają do studni kwantowej. Współczynnik a jest definiowany głównie przez (i) przekrój poprzeczny na absorpcję dla światła wzbudzającego w barierach otaczających studnię kwantową i w samej studni kwantowej, (ii) wydajność relaksacji nierezonansowo wytworzonych nośników do studni kwantowej, jak również (iii) straty promieniste i niepromieniste nośników podczas ich relaksacji. Dokładnie nie jest on jednak znany. Aby go oszacować przyjęto, że efektywna wartość absorpcji w barierze o grubości 130 nm $\text{Cd}_{0,1}\text{Mg}_{0,9}\text{Se}$ i 17 nm studni kwantowej CdSe dla światła długości fali 590 nm w temperaturze 8 K wynosi około 0,05-0,1. Dodatkowo założono, że 0,01 wykreowanych w wyniku absorpcji nośników osiąga stan podstawowy studni kwantowej [69]. Otrzymana wartość a mieści się więc w zakresie od 0,0005 do 0,001. Wartość ta jest spójna z przyjętą w publikacji [15], gdzie a wynosiła 0,0012.

W tabeli 4.4.1 zestawiono wartości progowe mocy pobudzania wyznaczone w eksperymencie wraz z odpowiadającymi im gęstościami N_{exc} nośników wprowadzanymi do studni kwantowej w impulsie dla $a = 0,001$. Podana wartość N_{exc} w temperaturze pokojowej wyraża górną granicę N_{exc} , gdyż ze względu na rosnący wkład rekombinacji nieradiacyjnej wartość a będzie maleć wraz z rosnącą temperaturą.

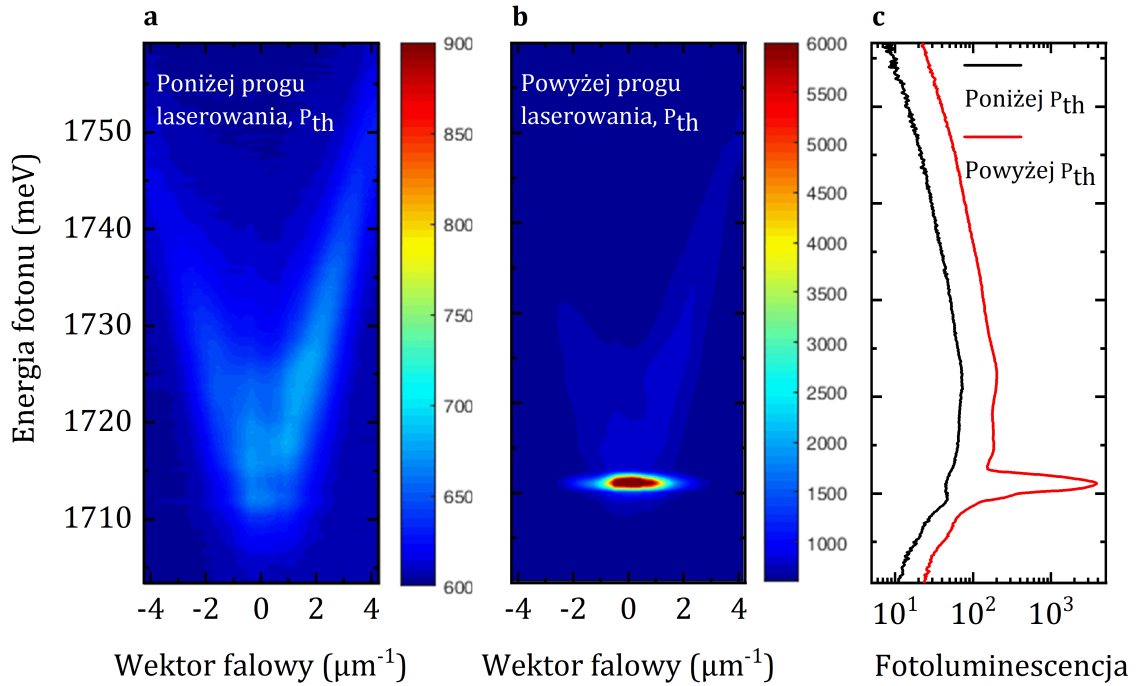
	Moc progowa	Gęstość nośników w impulsie N_{exc}	Typ laserowania
	(kW cm ⁻²)	cm ⁻²	
3*8 K	0,75 35 280	2,9*10 ⁹ 1,3*10 ¹¹ 1,1*10 ¹²	polarytonowe fotonowe (eksycytony) fotonowe (plazma elektronowo-dziurowa)
300 K	450	1,7*10 ¹²	fotonowe (plazma elektronowo dziurowa)

Tabela 4.4.1: Progowa gęstość mocy pobudzania, gęstość nośników wprowadzanych do studni kwantowej w pojedynczym impulsie pobudzającym oraz typ laserowania obserwowanego w eksperymencie. Gęstość nośników odpowiadająca przejściu Motta to $2,4 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, co odpowiada gęstości mocy pobudzania 85 kW cm^{-2} .

4.5 LASEROWANIE FOTONOWE Z PLAZMY ELEKTRONOWO-DZIUROWEJ W TEMPERATURZE POKOJOWEJ

Wykazano dla badanej struktury, że w temperaturze pokojowej w dyskretnych punktach na próbce również można zaobserwować efekty laserowania. Na rysunku 4.5.1 zaprezentowano zależność widma emisji od mocy pobudzania. Nieliniowy wzrost intensywności o trzy rzędy wielkości przy wzroście mocy pobudzania o 0,5 rzędu wielkości oraz gwałtowne zawężenie linii emisyjnej i przesunięcie jej w stronę wyższych energii świadczy o występowaniu zachowania progowego, które towarzyszy zajściu akcji laserowej. Wraz ze wzrostem intensywności sygnału w widmie pojawiają się dodatkowe mody. Położenie spektralne analizowanego modu zostało zaznaczone na rysunku przerywaną czerwoną linią.

Jak widać na rysunku 4.5.2, emisja poniżej progu laserowania charakteryzuje się szeroką spektralnie linią emisyjną, a także szerokim zakresem równoległego wektora falowego $k_{||}$. Powyżej progu emisja jest znacznie węższa oraz zlokalizowana nieco powyżej energii modu fotonowego. Pokazuje to, że nieliniowy wzrost emisji w funkcji mocy pobudzania w temperaturze pokojowej pochodzi z emisji stymulowanej fotonów do stanu podstawowego modu mikrowętkowego. Brak

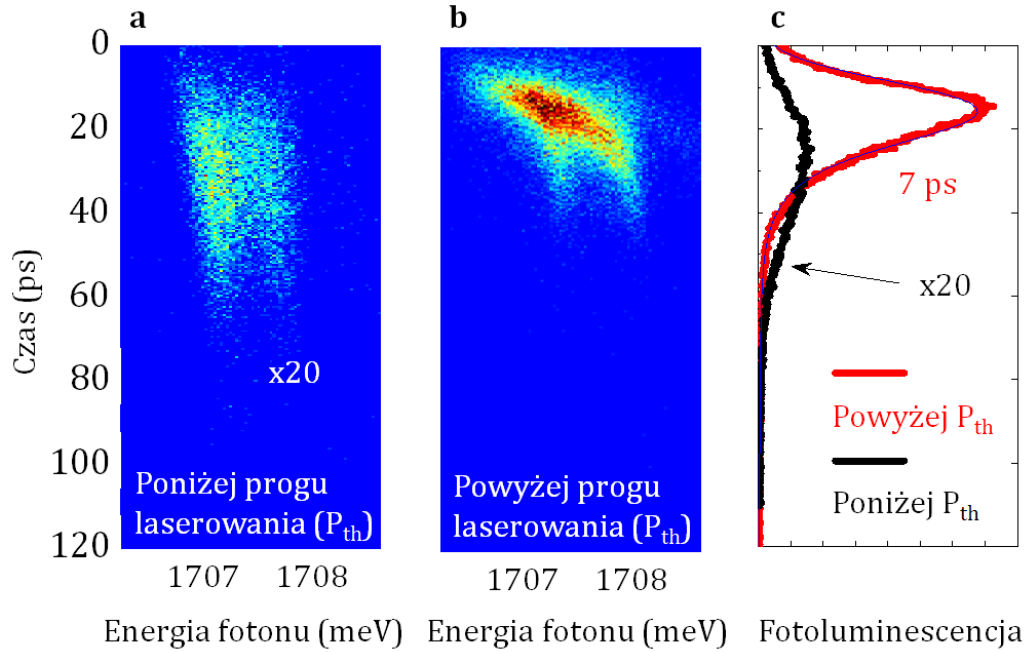


Rysunek 4.5.2: Emisja w funkcji równoległego wektora falowego $k_{\parallel}$ w 300 K dla mocy pobudzenia poniżej progu laserowania z plazmy elektronowo-dziurowej ($0,65 P_{th}$) i **b** powyżej tego progu ($1,17 P_{th}$). Zintegrowane widma emisji zaprezentowano w panelu **c**.

występowania wyraźnie odseparowanych dyskretnych modów świadczy o tym, że badany obszar nie posiadał dodatkowego związania fotonów wynikającego z obecności pułapki fotonicznej.

Pomiar dynamiki emisji w 300 K (patrz rysunek 4.5.3) ujawnia skrócenie zaniku emisji z dziesiątek ps do około 7 ps, przy przejściu powyżej progu laserowania. Ponadto, czas narastania emisji również zmniejsza się, a emisja przesuwa się w stronę mniejszych opóźnień względem impulsu pobudzającego. Tego typu efekty związane z przejściem powyżej progu laserowania obserwowano poprzednio np. w przypadku studni kwantowych GaAs w słabym sprzężeniu z mikrowną w okolicy przejścia Motta [104].

Zanikowi intensywności emisji towarzyszy przesunięcie linii emisyjnej w kierunku



Rysunek 4.5.3: Emisja rozdzielona w czasie zarejestrowana w temperaturze 300 K dla gęstości mocy pobudzenia: **a** poniżej progu laserowania $P_{exc} = 286 \text{ kW cm}^{-2}$ i **b** powyżej progu laserowania $P_{exc} = 516 \text{ kW cm}^{-2}$. Zintegrowana emisja pokazana została w panelu **c** wraz z dopasowanym spletem zaniku wykładniczego oraz krzywej Gaussa o szerokości 12 ps. Stała czasu zaniku została określona wyłącznie dla gęstości mocy $P_{exc} = 516 \text{ kW cm}^{-2}$. Dla $P_{exc} = 286 \text{ kW cm}^{-2}$ wynosi około kilkudziesięciu pikosekund.

wyższych energii, podobnie jak opisano wcześniej dla laserów bazujących na rekombinacji plazmy elektronowo-dziurowej w ZnO [105]. Zmiana energii jest stosunkowo słaba dla pobudzenia poniżej mocy progowej (około 0,3 meV; patrz rysunek 4.5.3 **a**), podczas gdy jest znacznie silniejsza powyżej progu (około 1,5 meV; patrz rysunek 4.5.3 **b**). Wynik ten pokazuje, że wprowadzenie dużej gęstości par elektron-dziura do studni kwantowej powoduje w skali kilku pikosekund zmniejszenie przerwy energetycznej z powodu efektów grzania nośników [104, 105]. Gdy temperatura nośników spada w czasie kolejnych kilkunastu pikosekund, a ich populacja zmniejsza się poprzez rekombinację promienistą i niepromienistą, zmniejsza się renormalizacja przerwy wzbronionej i powoduje przesunięcie w kierunku wyższych energii. Dodatkowy, lecz niedominujący wkład w przesunięcie w kierunku wyższych energii zapewnia modyfikacja

współczynnika załamania światła we wnęce [106] indukowana przez zwiększoną gęstość nośników.

Za obserwowane przesunięcie spektralne emisji w wyższe energie odpowiada więc inny mechanizm niż w przypadku silnego sprzężenia, w którym przesunięcie ku niskim energiom podczas zaniku emisji interpretowane jest jako osłabienie oddziaływań polaryton-polaryton związane ze zmniejszaniem się ich populacji. [104]

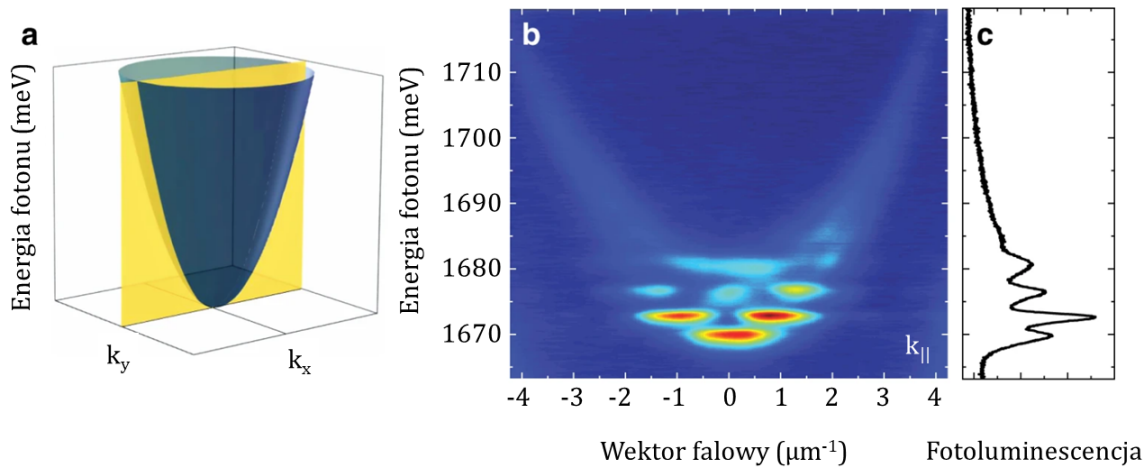
4.5.1 TRÓJWYMIAROWE OGRANICZENIE ŚWIATŁA W PUŁAPKACH FOTONICZNYCH

Intensywna emisja i jej nieliniowy wzrost w zależności od mocy pobudzenia obserwowane są dla dyskretnych punktów na próbce. Sugeruje to lokalne zwiększenie oddziaływania między ekscytonami i fotonami oraz obniżenie progu laserowania w wyniku lokalnego ograniczenia propagacji światła w płaszczyźnie mikrownęki. Jak dotąd efekt trójwymiarowego ograniczenia fotonicznego w mikrownękach planarnych był osiągnięty przez trawienie mikrofilarów [85, 107], formowanie przestrzenne wiązki pobudzającej [108, 109], wprowadzenie lokalnego naprężenia [13, 86], mikrostrukturyzację powierzchni próbki w postaci siatki podfalowej [90, 110] lub w wyniku nieporządku w wiążącym potencjale fotonowym tworzącym się spontanicznie lub wprowadzanym intencjonalnie [56, 111–116].

W omawianym przypadku zwiększenie luminescencji w dyskretnych punktach przypisywane jest obecności pułapek fotonicznych [56, 113, 116] wynikających z niejednorodności potencjału fotonicznego utworzonych spontanicznie podczas wzrostu próbki.

Aby zweryfikować tę hipotezę, wykonano badania mikroluminescencji z rozdzielczością kątową w punktach, które wykazały silny sygnał. Pomiar przeprowadzono w temperaturze pokojowej, w której efekty polarytonowe są zaniedbywalne, a właściwości emisyjne określane są głównie przez potencjał ograniczający fotony. Typowe widmo emisji takiego punktu przy silnym wzbudzeniu zawiera typowo szereg dyskretnych linii.

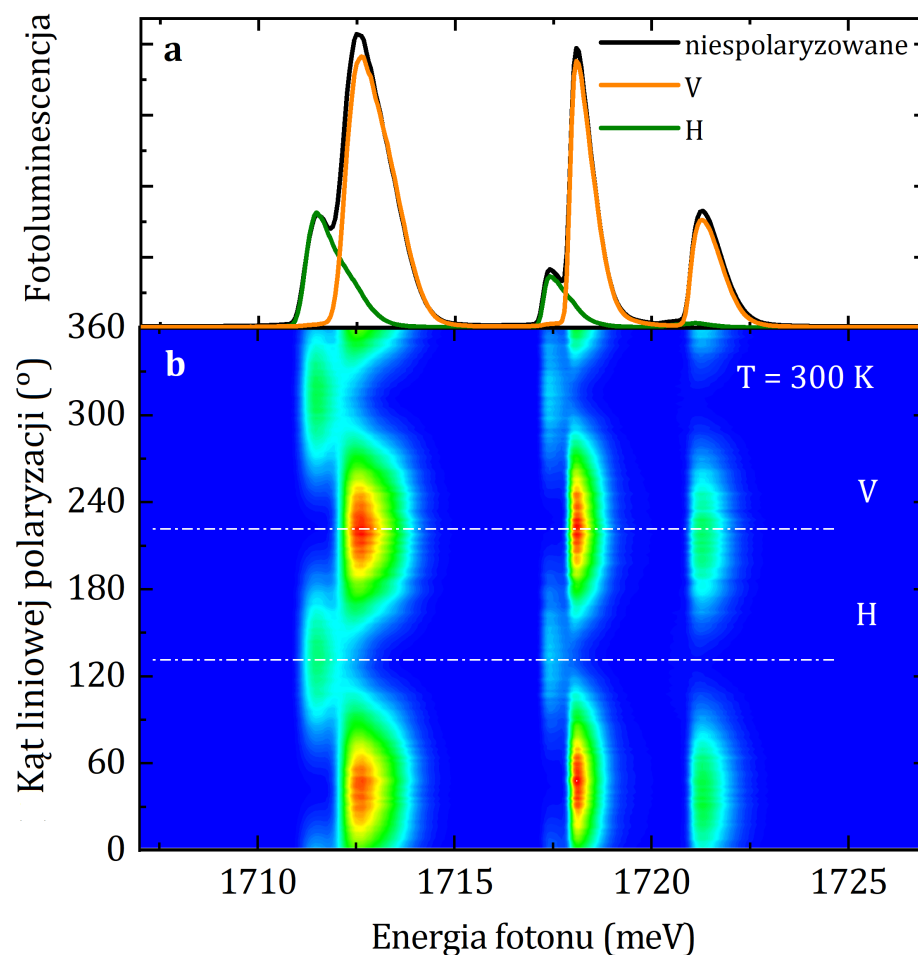
Trójwymiarowa rekonstrukcja przestrzeni pędów ujawnia skwantowaną strukturę modów występujących na parabolicznej dyspersji pędu fotonów uwięzionych w mikrownęce. Szczegóły dotyczące metody mapowania przestrzeni pędów zostały omówione w rozdziale 3.2.2.



Rysunek 4.5.4: Mikro-fotoluminescencja w 300 K z rozdzielczością kątową - przekrój pionowy. **a** Schemat i **b** zmierzony przekrój przez przestrzeń pędu fotonu w $k_{||} = 0$ ujawniający układ dyskretnych poziomów nałożonych na paraboliczną dyspersję planarnej mikrownęki. **c** Zintegrowane widmo emisji odpowiadające **b**.

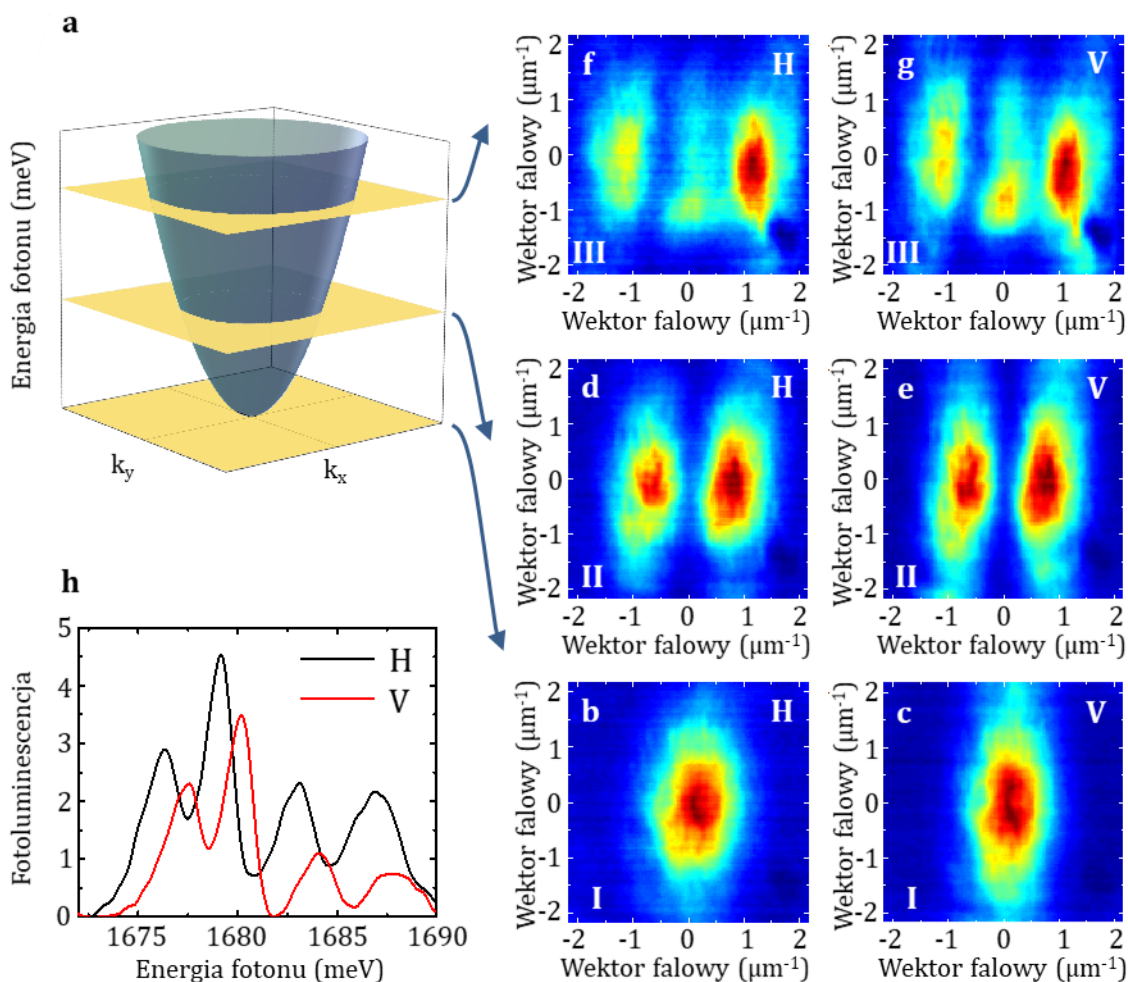
Zależność energii fotonu od wektora falowego w $k_{||} = 0$ zaprezentowano na rysunku 4.5.4. Wynik ten jest jakościowo podobny do opisanego poprzednio dla zero-wymiarowych pułapek fotonicznych utworzonych naturalnie w mikrownęce opartej na CdTe [56, 113–115] lub utworzonej intencjonalnie w mikrownęce bazującej na GaAs [90, 111]. Separacja energetyczna między kolejnymi submodami i rozkład kątowy emisji z pułapek są porównywalne z otrzymywanymi dla mikroflarów o średnicy 3–5 μm , co potwierdzono przez badania mikroflarów o różnych średnicach wytrawionych z mikrownęki planarnej (więcej w podrozdziale 4.6).

Emisja w temperaturze pokojowej jest liniowo spolaryzowana z dwoma prostopadłymi kierunkami, co zaprezentowano na rysunku 4.5.5. Wskazuje to, że pułapka fotoniczna odpowiedzialna za emisję charakteryzuje się anizotropią kształtu w płaszczyźnie próbki. Kierunki polaryzacji, niezależne od mocy pobudzania, odpowiadają dwóm głównym osiom symetrii pułapki. Nie zaobserwowano kołowej polaryzacji emisji opisywanej wcześniej dla laserowania z plazmy elektronowo-dziurowej w mikrownękach GaAs [91]. Jest to najprawdopodobniej spowodowane dużym stopniem asymetrii pułapki.



Rysunek 4.5.5: **a** Widmo emisji w 300 K dla pułapki fotonicznej we wnęce planarnej: niespolaryzowane (czarna linia) i rozdzielone w dwóch ortogonalnych polaryzacjach liniowych oznaczonych jako H i V (odpowiednio zielone i pomarańczowe linie). **b** Widma mikrofotoluminescencji w funkcji kąta liniowej polaryzacji detekcji. Kierunkom liniowej polaryzacji modów odpowiadają główne osie symetrii pułapki fotonicznej wykazującej anizotropię kształtu, leżące w płaszczyźnie próbki.

W celu określenia wpływu asymetrii pałapki fotonicznej na przestrzenny rozkład emisji wykonano pomiar mapowania przestrzeni pędów rozdzielony polaryzacyjnie.



Rysunek 4.5.6: Mikrofotoluminescencja w 300 K z rozdzielczością kątową - przekrój poziomy. **a** Schemat oraz **b–g** zmierzone przekroje przestrzeni pędu fotonu dla energii trzech pierwszych modów w dwóch ortogonalnych polaryzacjach liniowych (oznaczonych jako H i V). **h** Odpowiadające widma emisji w dwóch ortogonalnych polaryzacjach liniowych.

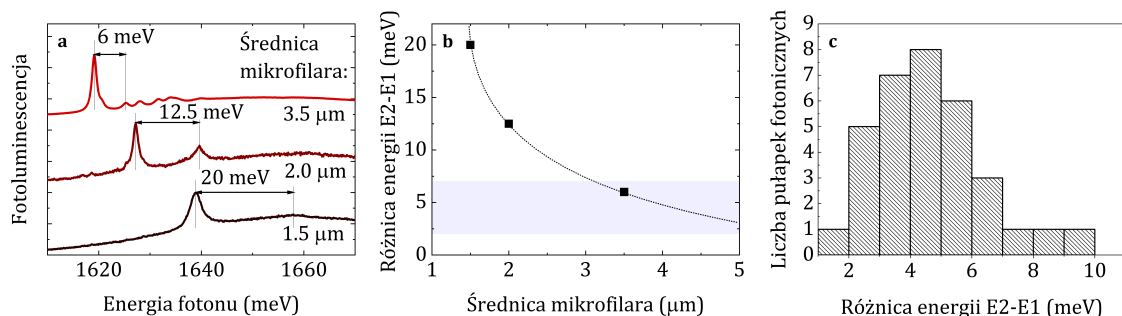
Rysunek 4.5.6 przedstawia przekroje poprzeczne przestrzeni pędów fotonów w płaszczyźnie $k_{\parallel}$ odpowiadającym dwóm prostopadłym kierunkom liniowej polaryzacji detekcji

oraz dwóm osiom głównym symetrii pułapki (rysunki 4.5.6 oraz 4.5.4 przedstawiają różne pułapki fotoniczne). Przekroje zostały wybrane tak, aby odpowiadały energiom trzech pierwszych modów pułapki fotonicznej. Pierwszy z nich pokazany na rysunku 4.5.6 **b, c** wykazuje rozkład emisji z pojedynczym maksimum skupionym wokół $k_{||} = 0$. Rozkład emisji drugiego modu zawiera dwa (rysunek 4.5.6 **d, e**), natomiast trzeci mod (rysunek 4.5.6 **f, g**) trzy maksima. Przedstawione obrazy są zbliżone do tych, które obserwowano wcześniej dla mikrofilarów o eliptycznym przekroju [117], układów dwóch złączonych mikrofilarów (molekuł fotonicznych) [118] lub naturalnych pułapek tworzących się podczas wzrostu epitaksjalnego w mikrownęce planarnej GaAs [113, 114].

Jak wskazuje rysunek 4.5.6, rozkład emisji jest porównywalny dla obu ortogonalnych, polaryzacji liniowych światła. Podobny wynik uzyskano podczas badania molekuł fotonicznych [118]. Sugeruje to, że rozkład ten nie zależy od polaryzacji emitowanego światła, a jedynie od anizotropii kształtu pułapki fotonicznej.

4.6 OSZACOWANIE EFEKTYWNEGO ROZMIARU PUŁAPKI FOTONICZNEJ ZA POMOCĄ REFERENCYJNYCH MIKROFILARÓW

Efektywne rozmiary pułapek fotonicznych występujących w badanej próbce określono przez referencyjne pomiary mikrofilarów wytrawionych przy użyciu skupionej wiązki jonów (*ang. Focused Ion Beam, FIB*) Ga^{+} w tej samej próbce. Widma emisji uzyskane z mikrofilarów o średnicach od $1,5\ \mu m$ do $3,5\ \mu m$ zaprezentowano na rysunku 4.6.1 **a**. Zależność różnicy energii między pierwszym (E_1), a drugim (E_2) modem mikrownęki od średnicy mikrofilara, została przedstawiona na rysunku 4.6.1 **b**. Zbadano 33 pułapki fotoniczne uformowane spontanicznie we wnętrzu planarnej na etapie wzrostu próbki, takie jak opisywano w poprzednich rozdziałach, w celu określenia statystycznego rozkładu wartości różnicy energetycznej między dwoma najniższymi energetycznymi modami. Rysunek 4.6.1 **c** pokazuje, że w zależności od średnicy mikrofilara różnica energetyczna między E_2 i E_1 waha się od około 2 meV do 10 meV, z najbardziej typową wartością w zakresie od 2 meV do 7 meV. Złożenie informacji z rysunków 4.6.1 **b** i 4.6.1 **c** wskazuje, że efektywna średnica typowej pułapki fotonicznej w badanej próbce mieści się



Rysunek 4.6.1: **a** Widma fotoluminescencji z mikrofilarów o średnicy 1,5 μm , 2,0 μm i 3,5 μm wytrawionych z mikrownęki planarnej. **b** Różnica energii (E2-E1) między dwoma modami mikrofilara o najniższej energii. Poziomy pasek oznacza typowy zakres energii E2-E1 dla pułapek fotonicznych w badanej próbce, jak określono w panelu **c**. Przerywana linia służy prowadzeniu wzroku. **c** Histogram E2-E1 różnic energetycznych dla 33 pułapek fotonicznych w mikrownęcie planarnej.

w zakresie od 3 μm do 5 μm .

4.7 LASEROWANIE POLARYTONOWE Z SUPERSIECI $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$ W MIKROWNĘCE OPTYCZNEJ

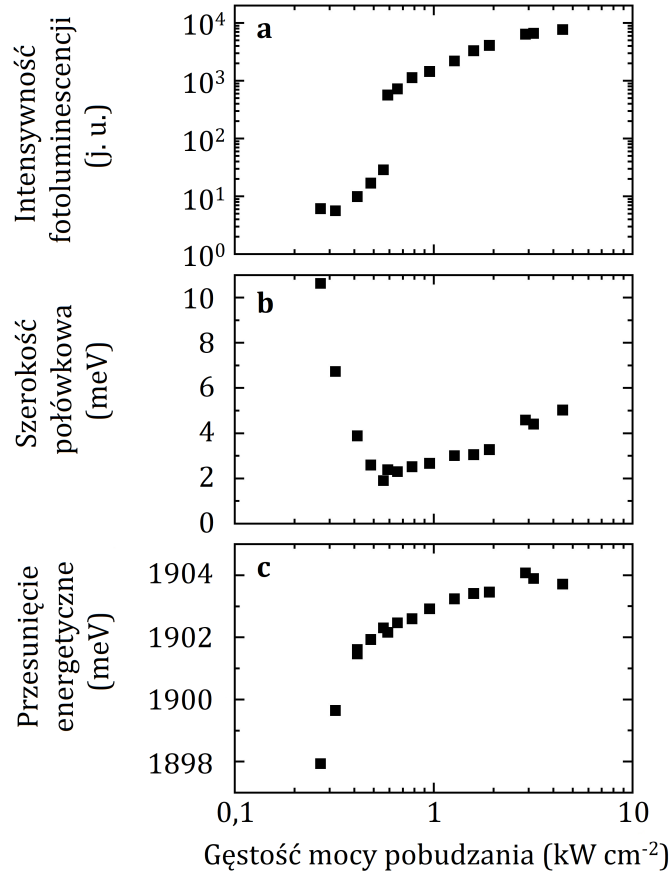
Zwiększenie liczby studni kwantowych przy jednocześnie wysokim współczynniku dobroci wnęki powinno przyczynić się do obniżenia progu laserowania polarytonowego w stosunku do struktur z pojedynczą studnią kwantową. W tej części zastosowano analogiczną do prezentowanej w pierwszej części tego rozdziału strukturę z supersiecią, składającą się z dziesięciu studni kwantowych $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$. Szczegóły dotyczące tej struktury przedstawiono w rozdziale 2.3.2.

Emisję pobudzano nierezonansowo laserem impulsowym wyposażonym w oscylator parametryczny. Gęstość polarytonów w przypadku pobudzania impulsowego jest znacznie większa niż w przypadku pobudzania laserem pracy ciągłej. Dla porównania impuls o długości fali 600 nm trwający 20 ps generuje 10^{11} ekscytonów/ cm^2 [119], podczas gdy ten sam czas pobudzania laserem pracy ciągłej o tej samej średniej mocy generuje około 10^9 ekscytonów/ cm^2 .

W oszacowaniu przyjęto wydajność konwersji fotonów do par elektron-dziura wynoszącą 0,001 [42]. Pobudzenie impulsowe może zatem powodować nieco większe przesunięcie gałęzi polarytonowych w wyższe energie, ze względu na silniejsze oddziaływania polaryton-polaryton oraz sprzężenie kondensatu polarytonów z rezerwuarem ekscytonów.

W przypadku systemów opartych na materiałach II-VI na właściwości emisyjne (również w zakresie nieliniowym), wpływa stosunkowo wysoki stopień nieuporządkowania krystalicznego w warstwach epitaksjalnych. Wprowadzenie zaburzenia potencjału fotonicznego odbywa się spontanicznie na poziomie wzrostu próbki, zapewnia dodatkowe związanie fotonów w mikrownęce w kierunku prostopadłym do osi wzrostu próbki. W konsekwencji rezerwuar generowanych ekscytonów sprzęga się z dyskretnymi modami fonicznymi, zamiast kontinuum stanów, jak w przypadku wnęki bez nieporządku. Ograniczenie to wpływa na znacznie mniejsze zawężenie linii emisyjnej wywołanej oddziaływaniami polaryton-polaryton niż w przypadku planarnej wnęki. Podobny efekt przedstawiony był dla struktury z pojedynczą studnią kwantową w pierwszej części tego rozdziału, a także w pracy poświęconej laserowaniu z mikrofilarów w systemie materiałowym III-V [85].

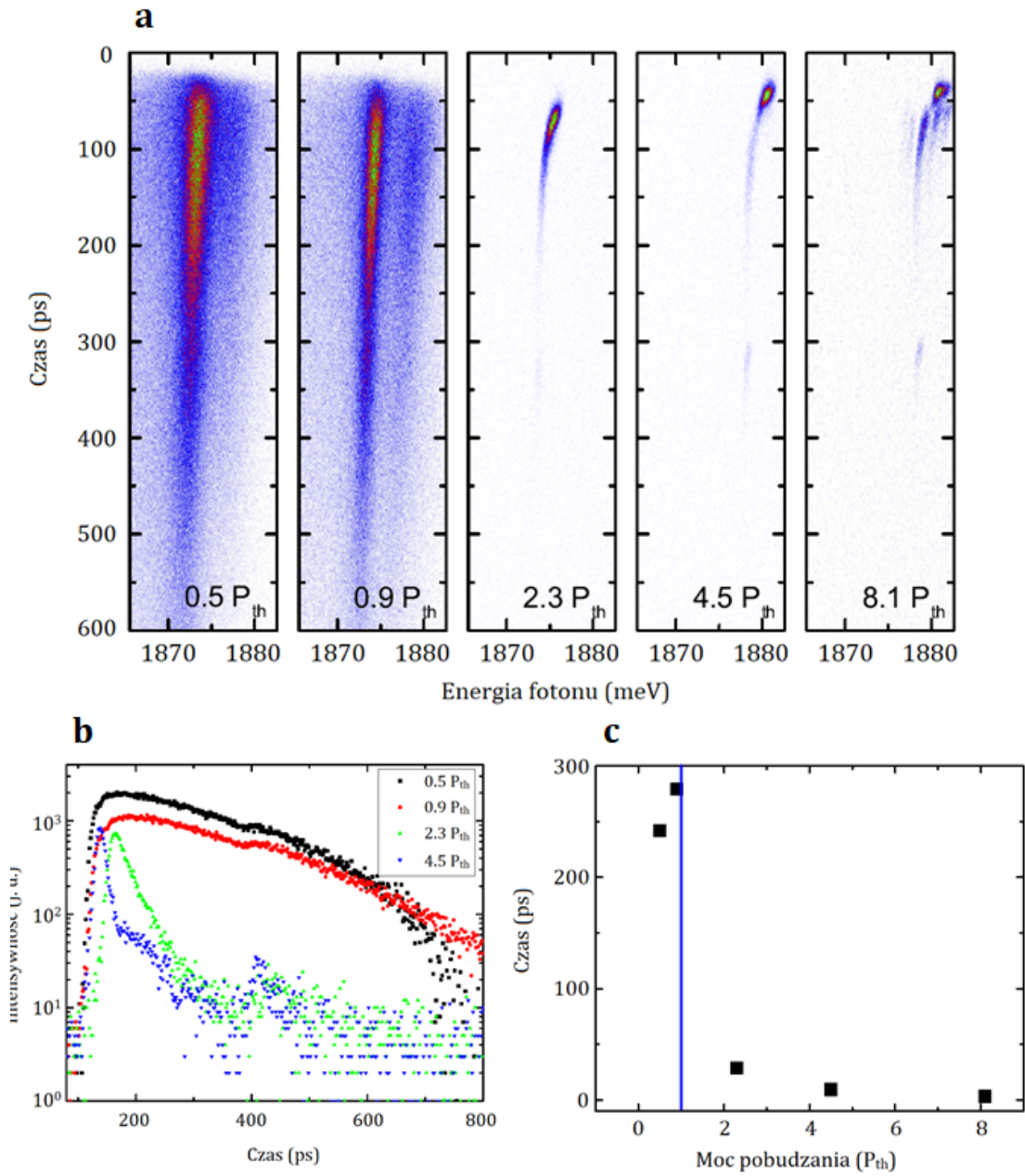
W celu zredukowania wpływu asymetrii pułapki fonicznej na emisję z mikrownęki wytrawiono cylindryczny mikrofilar o średnicy $2,5\ \mu\text{m}$. Wartość ta została wybrana na podstawie analizy rozmiaru naturalnych defektów fonicznych w podobnym systemie materiałowym, która wskazywała na to, że typowa naturalna pułapka ma efektywny rozmiar ponad $3\ \mu\text{m}$. Analiza ta dla mikrofilara o średnicy $2,5\ \mu\text{m}$ została przedstawiona w rozdziale 4.6. Na rysunku 4.7.1 pokazano zależność intensywności, szerokości połówkowej linii oraz energii fotonu emitowanego z dna dolnej gałęzi polarytonowej w funkcji gęstości mocy pobudzania w warunkach nierezonansowego pobudzania. Zaobserwowano charakterystyczne cechy związane z kondensacją Bose-Einsteina mikrownękowych polarytonów ekscytonowych - nieliniowy wzrost intensywności emitowanego sygnału 4.7.1 **a**, zawężenie szerokości linii emisyjnej 4.7.1 **b** oraz przesunięcie energetyczne jej maksimum 4.7.1 **c**. Wyznaczony próg laserowania w wartości ok. $0,5\ \text{kW cm}^{-2}$ występuje dla podobnej wartości jak w strukturze z pojedynczą studnią kwantową prezentowaną w pierwszej części tego rozdziału, gdzie wynosił on ok. $0,75\ \text{kW cm}^{-2}$. Niższy próg laserowania dla struktur z supersiecią oraz większe przesunięcie energetyczne niż w przypadku pojedynczej studni



Rysunek 4.7.1: Właściwości emisyjne mikrofilara o średnicy $2,5 \mu\text{m}$ wytrawionego w strukturze mikrowętkowej z dziesięcioma studniami kwantowymi $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$ od mocy pobudzenia. **a** zintegrowana intensywność, **b** szerokość linii oraz **c** energia emisji w funkcji mocy pobudzenia. Próg laserowania wynosi $0,5 \text{ kW cm}^{-2}$.

kwantowej $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$ można przypisać wyższej stałej sprzężenia światło-materia. Wynika ona z zastosowania większej liczby studni kwantowych, a co za tym idzie sumarycznie większej siły oscylatora ekscytanu. [23] Nieliniowa zależność progowa, której towarzyszy zwężenie linii i przesunięcie ku wyższym energiom w warunkach silnego sprzężenia sugeruje, że obserwowany typ laserowania można przypisać laserowaniu polarytonowemu. [12, 120]

Wraz z mocą pobudzenia zmienia się również dynamika emisji. Obrazy pochodzące



Rysunek 4.7.2: **a** Obrazy z kamery smugowej uzyskane dla różnej mocy pobudzenia. **b** Krzywe zaniku uzyskane z obrazów z rysunku **a**. Niewielki wzrost intensywności koło 420 ps jest artefaktem pomiaru. **c** Czas zaniku w funkcji mocy pobudzenia. Wartości uzyskane z dopasowania krzywych przedstawionych na rysunku **b**.

z kamery smugowej dla różnych mocy pobudzania zostały przedstawione na rysunku 4.7.2 a

Na podstawie obrazów z kamery smugowej wyznaczono krzywe zaniku przedstawione na rysunku 4.7.2 b. Pokazują one, że narastanie oraz zanik emisji gwałtownie przyspiesza po osiągnięciu wartości progowej laserowania od 250 ps do 3 ps, co zostało przedstawione na rysunku 4.7.2 c.

4.8 PODSUMOWANIE

Badania fotoluminescencji pojedynczej studni kwantowej $\text{CdSe}/(\text{Cd,Mg})\text{Se}$ umieszczonej w mikrownęce optycznej pozwoliły na obserwację trzech progów laserowania. Na podstawie m.in. analizy gęstości nośników przypisano pierwszy próg do lasera polarytonowego. Drugi wyższy o 1,5 rzędu wielkości, osiągnięty po przejściu do reżimu słabego sprzężenia, jest wynikiem emisji wymuszonej z udziałem ekscytonów. Natomiast trzeci próg wyższy o kolejny rząd wielkości, osiągnięty powyżej wartości przejścia Motta dla ekscytonów, świadczy o laserowaniu na plazmie elektronowo-dziurowej. Wejściu w każdy z reżimów lasowania towarzyszy zawężenie i przesunięcie w kierunku wyższych energii. Laserowanie z plazmy elektronowo-dziurowej obserwowane jest także w temperaturze pokojowej.

Mapowanie przestrzenne fotoluminescencji wykazało, że nieliniowe zależności w emisji są obserwowane tylko w dyskretnych, losowo rozmieszczonych punktach na próbce. Pełna tomografia przestrzeni pędów fotonów pokazuje, że emisja z tych punktów wykazuje dyskretne energie i rozkład przestrzenny emisji, taki jak opisano wcześniej dla mikrofilarów wykazujących trójwymiarowe uwięzienie światła.

Zależność właściwości emisyjnych od mocy pobudzania w niskich temperaturach struktury z supersiecią wykazały laserowanie polarytonowe o niskim progu podobnie jak w przypadku struktury z pojedynczą studnią kwantową. Analiza laserowania z mikrownęki została uzupełniona o pomiary dynamiki laserowania wykazujące gwałtowne skrócenie czasu zaniku po przejściu przez wartość progową. Na podstawie tego pomiaru wyznaczono czas życia polarytonów we wnęce poniżej i powyżej progu laserowania.

W powyższym rozdziale przedstawiono również badanie właściwości optycznych

mikrownęki dopasowanej sieciowo do ZnTe z emiterem składającym się z supersieci utworzonej ze studni kwantowych CdSe/(Cd,Mg)Se. Struktura użyta do badania wykazuje stosunkowo dużą wartość rozszczepienia Rabiego wynoszącą ok. 18 meV. Górna gałąź polarytonowa widoczna jest w widmach odbicia, ale nie jest możliwe zaobserwowanie jej bezpośrednio w standardowych pomiarach luminescencji. Jednakże umożliwia to pomiar pobudzania fotoluminescencji, który w świetle przedstawionych wyników stanowi alternatywną metodę wyznaczania rozszczepienia Rabiego.

*If one is working from the point of view of getting beauty into
one's equation, ... one is on a sure line of progress.*

— *Paul A. M. Dirac*

The evolution of the Physicist's Picture of Nature,
Scientific American 208 (5) 1963.

5

Reżim nieliniowy w układzie dwóch sprzężonych mikrownęk optycznych ze studniami kwantowymi (Cd,Zn)Te/(Cd,Zn,Mg)Te

W poniższym rozdziale przedstawione zostały badania efektów nieliniowych w układzie dwóch sprzężonych mikrownęk, którego tryby oddziałują z dwoma zestawami studni kwantowych. W odróżnieniu od poprzedniego rozdziału prezentującego struktury z emiterami selenkowymi wykorzystano system tellurkowy, który wykazuje znacznie niższą gęstość defektów strukturalnych odpowiadających za powstawanie pułapek fotonicznych. Przedstawiono badania dynamiki emisji z dwóch sprzężonych nierównowagowych kondensatów Bosego-Einsteina polarytonów o różnych energiach uzyskane przy pobudzaniu nierezonansowym. Obecności kondensatu na wyższej gałęzi polarytonowej towarzyszy międzygałęziowy transfer polarytonów.

Zaobserwowano krzywe zaniku kondensatu wykazujące charakter oscylacyjny przypisywany oddziaływaniu kondensatu z rezerwuarem ekscytonów. Ponadto, w badanym systemie dzięki czteropoziomowej zależności dyspersyjnej, obecność kondensatu wymusza zdegenerowane w energii rozpraszanie parametryczne polarytonów. Podobnego typu efekty obserwowano w układzie planarnych mikrownęk optycznych do tej pory tylko przy pobudzaniu ściśle rezonansowym. Prezentowane krzywe zaniku emisji z kondensatów, teoretycznie opisane przez model oparty na równaniach Grossa-Pitajewskiego sprzężonych z równaniami kinetycznymi opisującymi aktywny i nieaktywny rezerwuuar, dają wgląd w złożoną dynamikę polarytonów w systemach wielopoziomowych.

5.1 MOTYWACJA PROWADZONYCH BADAŃ

Układy sprzężonych mikrownęk optycznych stanowią atrakcyjną, wielopoziomową platformę do badania złożonych, nieliniowych zjawisk optycznych wynikających z silnego oddziaływania światła z materią. Jednakże dotychczasowe badania efektów takich, jak kondensacja polarytonów i laserowanie polarytonowe, którym poświęcony jest rozdział 4 niniejszej pracy, ograniczały się do układów dwupoziomowych bazujących na pojedynczej mikrownęce planarnej [14, 30, 38] lub molekuł fotonicznych określonych przez mikrostrukturyzację mikrownęki planarnej [70, 85, 121–126].

Wcześniejsze badania wielogałęziowych systemów polarytonowych realizowane były na sprzężonych mikrownękach z materiałami aktywnymi na bazie pierwiastków III-V, [127, 128] lub mikroślupkach półprzewodnikowych. [129–132]. Zaletą sprzężonych systemów opierających się na planarnych mikrownękach jest wysoki stopień ich przestrajalności. Były one jednak badane głównie w reżimie liniowym [65, 68, 128, 133–136] podczas, gdy co zaskakujące, reżim nieliniowy był rozpatrywany tylko w kontekście rozpraszania parametrycznego wywołanego pobudzeniem rezonansowym. [127, 137–139] W wielopoziomowych układach polarytonowych w odróżnieniu od pojedynczych mikrownęk możliwe jest występowanie parametrycznego rozpraszania polarytonów zdegenerowanych w pędzie [127] i w energii [137]. Występowanie zdegenerowanych w energii poziomów umożliwia rozpraszanie o charakterze parametrycznym z dna wyższej gałęzi polarytonowej do wysokich wartości wektora falowego niższej gałęzi

polarytonowej.

Zrozumienie oddziaływań nieliniowych, w tym kondensacji i międzygałęziowego rozpraszania polarytonów w wielopoziomowych systemach fonicznych oraz metody ich deterministycznej kontroli są niezbędne m.in. do generowania pojedynczych [140] i splątanych [141] fotonów, a także są istotne z punktu widzenia badania fonicznych efektów topologicznych [142–144] oraz polarytroniki [145, 146]. Rozszerzenie badań na efekty takie, jak zdegenerowane w energii lub pędzie parametryczne rozpraszanie polarytonów, [127, 138] przejścia fazowe fotonów ze stanu zlokalizowanego do zdelokalizowanego, [147] izolację optyczną, [133, 148] łamanie zasady symetrii parzystości i symetrii kierunku upływu czasu (PT), [149] lub wytwarzanie nieklasycznych stanów światła [141, 150] wymaga implementacji wielopoziomowego układu polarytonowego.

Najprostszym systemem umożliwiającym realizację wielopoziomowego układu polarytonowego są dwie sprzężone planarne wnęki z emiterami kwantowymi. Prezentowane w dalszej części tego rozdziału badania wskazują, że w takim czteropoziomowym układzie możliwe jest uzyskanie kondensatu polarytonów nie tylko w najniższej, ale również w wyższej gałęzi polarytonowej. Do badań wykorzystano strukturę ze studniami kwantowymi w systemie tellurkowym, który nie wymaga wprowadzania znacznych różnic temperatury podczas wzrostu epitaksjalnego kolejnych warstw, w przeciwieństwie do struktur opartych na selenie. Wpływa to znacząco na wyższą jakość uzyskiwanej struktury, co jest szczególnie istotne w przypadku złożonych systemów fonicznych, takich jak sprzężone układy mikrownękowe. W systemach tych z powodu występowania wielu warstw epitaksjalnych istnieje zwiększone ryzyko wystąpienia dyslokacji propagującej się przez strukturę. Szczegóły dotyczące badanej struktury zostały opisane w rozdziale 2.3.2. Wysoki stopień przestrajalności systemu powinien pozwolić na badanie różnych kanałów rozpraszania zdegenerowanej w pędzie lub energii pary polarytonów. [151, 152] Domieszkowanie manganem studni kwantowej w jednej z mikrownęk otwiera perspektywę dla naturalnego rozszerzenia niniejszego studium na zjawiska związane ze spinem, takie jak zachowanie spinu podczas zdegenerowanego rozpraszania parametrycznego oraz kontrola kondensacji polarytonów w układzie wielopoziomowym za pomocą pola magnetycznego. Z kolei mikrostrukturyzacja struktury otworzyłaby perspektywę badań efektów nieliniowych w dynamicznie rozwijającej się dziedzinie sieci polarytonowych. [153]

W szczególności, podwójna mikrownęka powinna umożliwić obserwację oddziaływania kondensatów w trzech wymiarach, z transferem polarytonów zachodzącym w dwóch kierunkach: równoległym i prostopadłym do płaszczyzny mikronęk.

5.2 MODEL TEORETYCZNY OPISUJĄCY ENERGIĘ GAŁĘZI POLARYTONOWYCH W WIELOPOZIOMOWYM UKŁADZIE MIKROWNĘKOWYM

Do opisania zależności dyspersyjnej gałęzi polarytonowych w układzie wielopoziomowym złożonym z modów fotonowych N_C mikrownęk i stanów ekscytonowych N_X studni kwantowych, zaadaptowany został model sprzężonych oscylatorów. W przypadku układów zawierających N gałęzi polarytonowych, gdzie $N = N_X + N_C$ odpowiedni Hamiltonian w bazie stanów ekscytonowych i modów fotonowych ma postać:

$$H_N = H_0 + H_{XC} + H_{CC} + H_{XX} \quad (5.1)$$

Pierwszy człon Hamiltonianu H_0 opisujący energię niesprzężonych stanów ekscytonowych i modów fotonowych można rozwinąć następująco:

$$H_0 = \sum_{\substack{1 \leq n \leq N_X \\ 1 \leq i \leq N_C}} \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \left(E_{C,i}(k_{\parallel}) a_{i,k}^{\dagger} a_{i,k} + E_{X,n}(k_{\parallel}) b_{n,k}^{\dagger} b_{n,k} \right), \quad (5.2)$$

gdzie $a_{i,k_{\parallel}}^{\dagger}$ ($a_{i,k_{\parallel}}$) jest operatorem kreacji (anihilacji) fotonu w i -tej mikrownęce z wartością wektora falowego $k_{\parallel}$ i energią $E_{C,i}(k_{\parallel})$. Analogicznie, operator $b_{n,k_{\parallel}}^{\dagger}$ ($b_{n,k_{\parallel}}$) jest operatorem kreacji (anihilacji) n -tego ekscytonu o wartości wektora falowego $k_{\parallel}$ i energii $E_{X,n}(k_{\parallel})$. W dalszej części tego rozdziału uwzględniany jest tylko mod podstawowy mikrownęk.

Komponent H_{XC} , reprezentujący oddziaływanie n -tego stanu ekscytonowego z i -tym modem fotonowym przyjmuje formę:

$$H_{XC} = \sum_{1 \leq i \leq N_C} \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \frac{\hbar \Omega_i(k_{\parallel})}{2} (a_{i,k_{\parallel}}^{\dagger} b_{i,k_{\parallel}} + a_{i,k_{\parallel}} b_{i,k_{\parallel}}^{\dagger}) \quad (5.3)$$

z parametrem $\Omega_i(k_{\parallel})$ opisującym sprzężenie między stanem ekscytonowym i modem fotonowym związanym w i -tej mikrownęce. W modelu pomijane jest oddziaływanie między modem i -tej wnęki z ekscytonem znajdującym się we wnęce o numerze innym niż i .

Człon H_{CC} , opisujący oddziaływanie między i -tym i j -tym modem fotonowym:

$$H_{CC} = \sum_{\substack{1 \leq i, j \leq N_C \\ i < j}} \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \frac{\hbar \kappa_{i,j}(k_{\parallel})}{2} (a_{i,k_{\parallel}} a_{j,k_{\parallel}}^{\dagger} + a_{i,k_{\parallel}}^{\dagger} a_{j,k_{\parallel}}) \quad (5.4)$$

gdzie parametr $\kappa_{i,j}$ określa sprzężenie między i -tym i j -tym modem fotonowym.

Składowa H_{XX} , opisująca interakcję między n -tym i m -tym stanem ekscytonowym:

$$H_{XX} = \sum_{\substack{1 \leq n, m \leq N_X \\ n < m}} \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} V_0^{\text{eff}} \frac{\hbar \Gamma_{n,m}(k_{\parallel})}{2} (b_{n,k_{\parallel}} b_{m,k_{\parallel}}^{\dagger} + b_{n,k_{\parallel}}^{\dagger} b_{m,k_{\parallel}}) \quad (5.5)$$

z parametrem $\Gamma_{n,m}$ opisującym sprzężenie między n -tym i m -tym stanem ekscytonowym. Dla wartości wektorów falowych bliskich zeru efektywny potencjał oddziaływań między ekscytonami $V_0^{\text{eff}} = \frac{6e^2 a_B^*}{\epsilon A} = g_{\text{exc}}$, gdzie e to ładunek elektronu, a_B^* to promień Bohra ekscytonu, ϵ statyczna stała dielektryczna, a A obszar kwantyzacji. W badanym systemie opartym na planarnych mikrownękach odległość między ekscytonami studni kwantowych zlokalizowanych w różnych mikrownękach jest znacznie większa niż rozmiar funkcji falowych ekscytonów. W związku z tym wartość $\Gamma_{n,m}$ jest pomijalnie mała i człon H_{XX} nie jest brany pod uwagę w obliczeniach.

Badany czteropoziomowy ($N = 4$) system polarytonowy powstaje z oddziaływania dwóch układów studni kwantowych ($N_X = 2$) i dwóch modów fotonowych ($N_C = 2$). W związku z tym Hamiltonian w notacji macierzowej przybiera postać macierzy 4×4 :

$$H_{4 \times 4} = \begin{pmatrix} E_{X,1}(k_{\parallel}) & \hbar \Omega_1(k_{\parallel})/2 & 0 & 0 \\ \hbar \Omega_1(k_{\parallel})/2 & E_{C,1}(k_{\parallel}) & \hbar \kappa_{1,2}(k_{\parallel})/2 & 0 \\ 0 & \hbar \kappa_{1,2}(k_{\parallel})/2 & E_{C,2}(k_{\parallel}) & \hbar \Omega_2(k_{\parallel})/2 \\ 0 & 0 & \hbar \Omega_2(k_{\parallel})/2 & E_{X,2}(k_{\parallel}) \end{pmatrix} \quad (5.6)$$

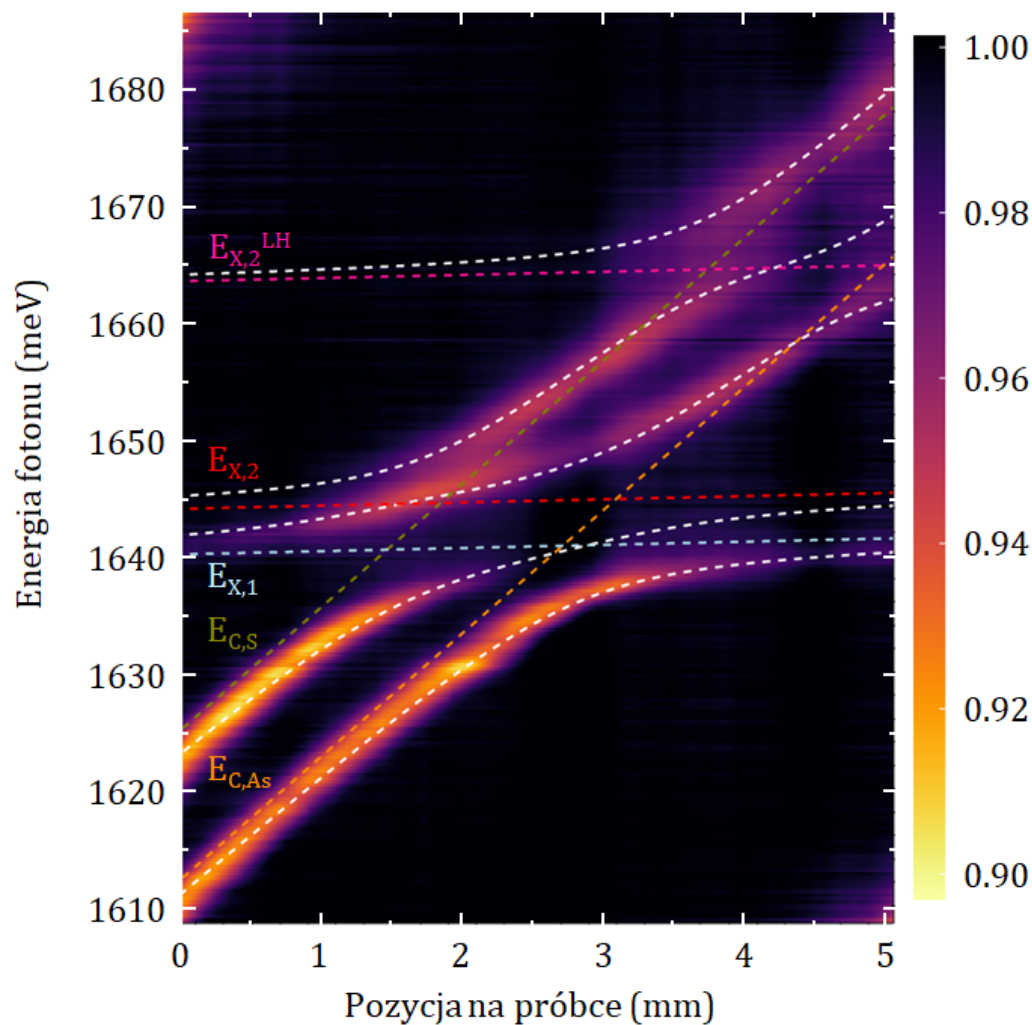
5.2.1 REŻIM SILNEGO SPRZĘŻENIA ŚWIATŁO-MATERIA W UKŁADZIE WIELOPOZIOMOWYM

Podobnie jak w przypadku struktur z jedną wnęką o warunkach silnego sprzężenia świadczy *anticrossing* w wartości rezonansowej poziomów energetycznych zmieniających swą wartość w funkcji wzajemnego odstrojenia. Może być obserwowany np. w mapowaniu przestrzennym struktury metodą odbicia światła białego.

Rysunek 5.2.1 przedstawia widma odbicia zarejestrowane dla kolejnych pozycji na próbce wzdłuż gradientu grubości mikrownęk. Wykres pozwala na prześledzenie zmian energii poziomów polarytonowych w funkcji odstrojenia między modami optycznymi sprzężonych mikrownęk i ekscytonami studni kwantowych. Zaznaczono na nim także poziomy energetyczne niesprężonych stanów: ekscytonowych utworzonych w wyniku oddziaływania elektronów z ciężkimi dziurami w studni kwantowej umieszczonej w *górnej* wnęcie $E_{X,1}^{HH1}$, ekscytonowych ciężkodziurowych $E_{X,2}^{HH}$ i lekkodziurowych $E_{X,2}^{LH}$ studni kwantowej z *dolnej* mikrownęki, a także mody sprzężonego układu mikrownęk: symetryczny $E_{C,S}$ i antysymetryczny $E_{C,AS}$. W wyniku zmiany miejsca na próbce, sprzężone mody optyczne mikrownęk zmieniają energię i wchodząc w rezonans kolejnymi przejściami ekscytonowymi doświadczają odpychania, które świadczy o występowaniu reżimu silnego sprzężenia. Dodatkowe przejście optyczne związane ze stanem lekkodziurowym ekscytonów widoczne na mapie odbicia dla energii ok. 1664 meV odpowiada za *anticrossing* w położeniu ok. 3.8 mm.

Do opisu poziomów polarytonowych zarejestrowanych na mapie odbicia zastosowano zmodyfikowany wariant równania 5.6 uwzględniający przejście $E_{X,2}^{LH}$. Hamiltonian 5.7 przyjmuje

¹W celu rozróżnienia wnęki znajdująca się bliżej powierzchni próbki będzie nazywana *górną* oraz indeksowana numerem 1, natomiast umieszczona bliżej podłoża próbki - *dolną* z indeksem 2.



Rysunek 5.2.1: Widma odbicia zarejestrowane w funkcji odstrojenia między modami sprzężonych mikrownek, a poziomami ekscytonowymi studni kwantowych w temperaturze 1.8 K. Oznaczenia: stany ekscytonowe ciężkodziurów $E_{X,1}$, $E_{X,2}$ lekkodziurów $E_{X,2}^{LH}$, i sprzężone mody wewnętrzne $E_{C,As}$ i $E_{C,S}$. Poziome polarytonowe przedstawiono za pomocą białych przerywanych kresek. W lewym górnym i prawym dolnym rogu obrazka widać krawędzie *stopbandu*. Po prawej stronie pokazana jest skala kolorów.

formę macierzy 5×5 :

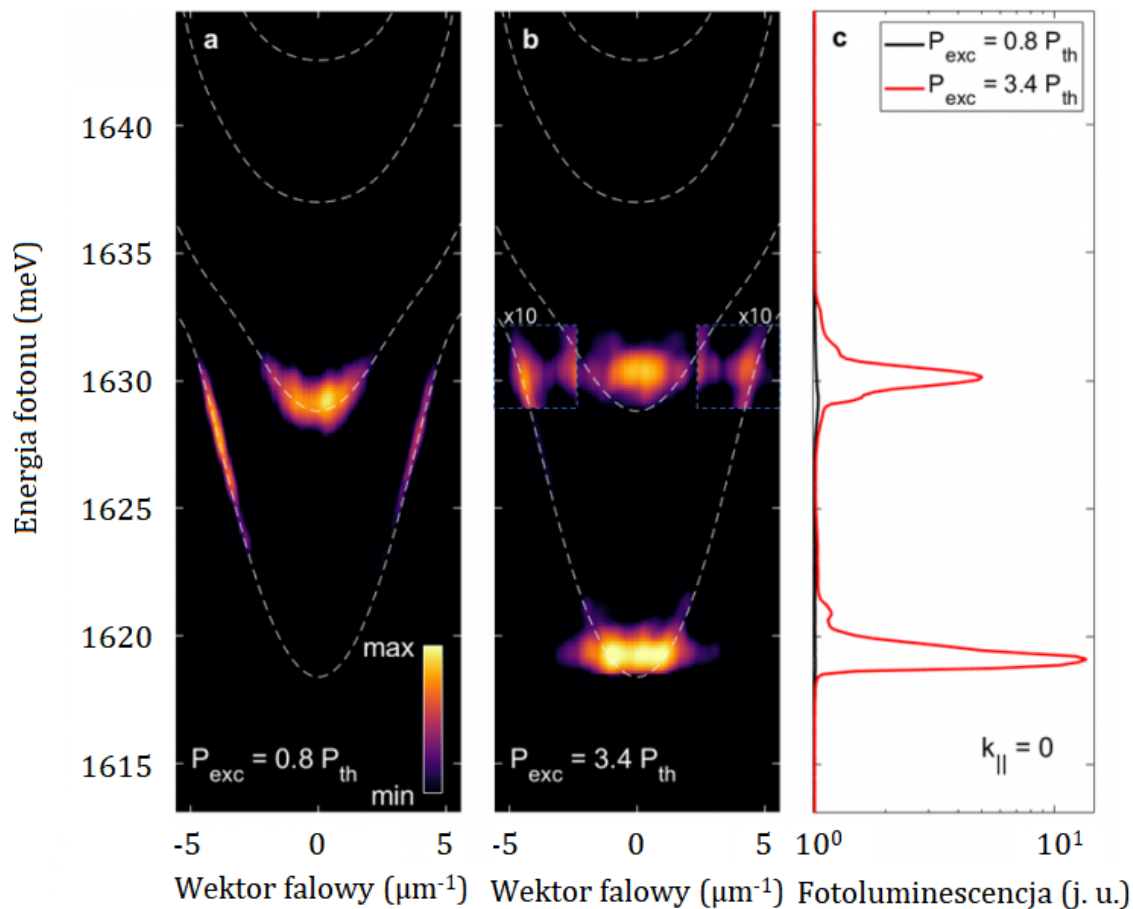
$$H_{5 \times 5} = \begin{pmatrix} E_{X,1}^{HH}(k_{\parallel}) & \hbar\Omega_1^{HH}(k_{\parallel})/2 & 0 & 0 & 0 \\ \hbar\Omega_1^{HH}(k_{\parallel})/2 & E_{C,1}(k_{\parallel}) & \hbar\kappa_{1,2}(k_{\parallel})/2 & 0 & 0 \\ 0 & \hbar\kappa_{1,2}(k_{\parallel})/2 & E_{C,2}(k_{\parallel}) & \hbar\Omega_2^{HH}(k_{\parallel})/2 & \hbar\Omega_2^{LH}(k_{\parallel})/2 \\ 0 & 0 & \hbar\Omega_2^{HH}(k_{\parallel})/2 & E_{X,2}^{HH}(k_{\parallel}) & 0 \\ 0 & 0 & \hbar\Omega_2^{LH}(k_{\parallel})/2 & 0 & E_{X,2}^{LH}(k_{\parallel}) \end{pmatrix} \quad (5.7)$$

Stałe sprzężenia uzyskane w wyniku dopasowania energii poziomów polarytonowych uzyskanych z diagonalizacji Hamiltonianu 5.7, do energii przejść optycznych na rysunku 5.2.1 wynoszą odpowiednio: $\hbar\Omega_1^{HH} = 12 \pm 0,3$ meV, $\hbar\Omega_2^{HH} = 10,6 \pm 0,3$ meV, $\hbar\kappa_{1,2} = 12,8 \pm 0,2$ meV, $\hbar\Omega_2^{LH} = 9,8 \pm 0,4$ meV. W tym miejscu należy zauważyć, że w odróżnieniu od przypadku dwupoziomowego układu polarytonowego, poziomy sprzężone (gałęzie polarytonowe) i niesprężone (mody wnekowe i stany ekscytonowe) przecinają się, tak jak jest to widoczne na mapie odbicia pokazanej na rysunku 5.2.1.

5.2.2 DYSPERSJA GAŁĘZI POLARYTONOWYCH W CZTEROPOZIOMOWYM SYSTEMIE POLARYTONOWYM

W niniejszym podrozdziale omówione zostały badania emisji z układu sprzężonych mikrownek pod nierezonansowym pobudzeniem impulsowym. Duży stopień przestrajalności modów wnekowych pozwala na obserwację efektów polarytonowych w szerokim zakresie wartości odstojenia ekscyton-foton. Zakres strojenia modów wnekowych wynosi ok. 50 meV (od 1618,5 do 1672,5 meV). Do dalszych badań wybrano punkt na próbce, w którym polarytony wykazują dominujący wkład fotonowy (odstojenie² ok. $\delta = -16,25$ meV). Punkt ten odpowiada wartości pozycji 0,7 mm na rysunku 5.2.1.

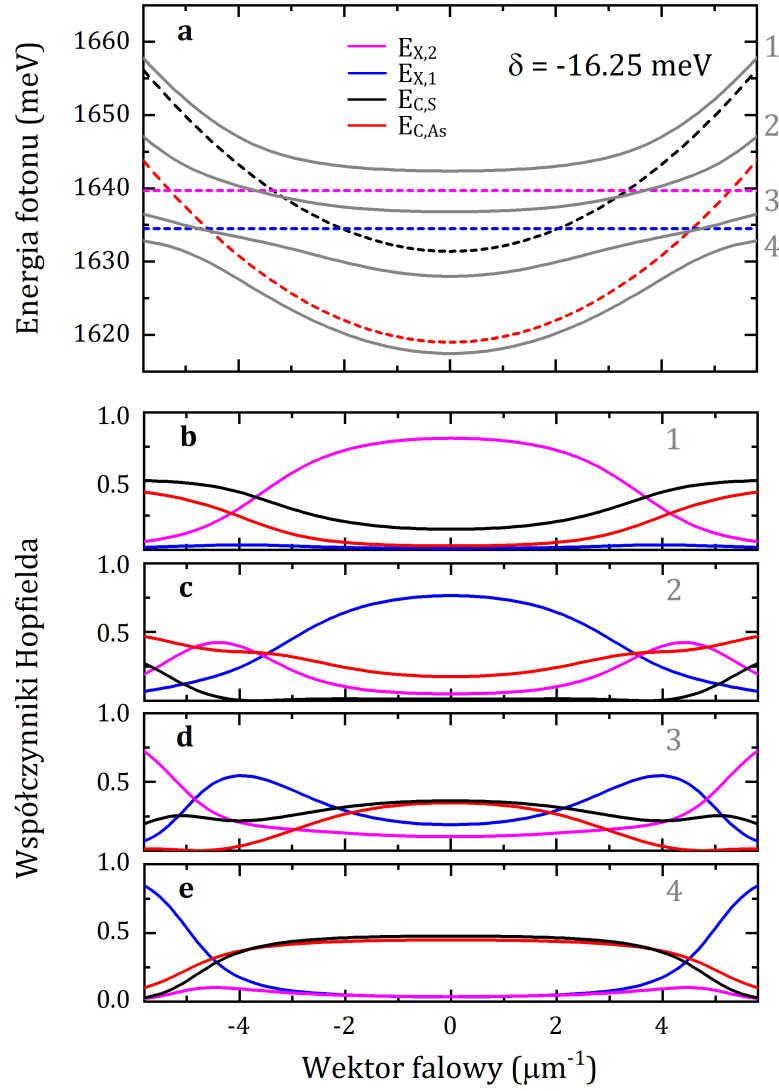
²Odstojenie zostało wyliczone według wzoru $\delta = \frac{1}{2}[(E_{C,S} + E_{C,As}) - (E_{X,1} + E_{X,2})]$.



Rysunek 5.2.2: Krzywe dyspersji dolnych gałęzi polarytonowych **a** poniżej ($P_{\text{exc}} = 0.3P_{\text{th}}$) i **b** powyżej ($P_{\text{exc}} = 1.3P_{\text{th}}$) progu laserowania polarytonowego, gdzie P_{th} wynosi 25 kW cm^{-2} . **c** Zintegrowany sygnał z obszaru od $-2.5 \mu\text{m}^{-1}$ do $2.5 \mu\text{m}^{-1}$. Białe linie reprezentują obliczone za pomocą modelu sprzężonych oscylatorów krzywe dyspersji. Na rysunku **b** obszary w okolicy $-4.1 \mu\text{m}^{-1}$ i $4.1 \mu\text{m}^{-1}$ w wartości energii 1630 meV zostały pomnożone przez wartość 10. Skala kolorów została znormalizowana do najsilniejszego sygnału na widmie.

Rysunek 5.2.2 przedstawia zarejestrowane krzywe dyspersji dwóch najniższych gałęzi polarytonowych otrzymane w eksperymencie dla dwóch mocy pobudzenia, wraz z zasymulowanymi za pomocą Hamiltonianu 5.7 zależnościami. Pomiary fotoluminescencji rozdzielonej kątowo stanowią dodatkowe potwierdzenie występowania reżimu silnego sprzężenia światło-materia w badanej strukturze. W wyniku tego sprzężenia i *anticrossingu* będącego jego konsekwencją gałęzie polarytonowe w czteropoziomowym układzie przybierają nieparaboliczny kształt. Na rysunku 5.2.2 a widoczna jest dominująca emisja z górnego poziomu i znacznie słabsza emisja z regionu *bottleneck* dolnej gałęzi polarytonowej. Po przekroczeniu wartości progowej można dostrzec jakościową zmianę kształtu widma zaprezentowaną na rysunku 5.2.2 b. Ujawnia ono dwa silne sygnały pochodzące z dna dwóch najniższych gałęzi polarytonowych. Pochodzenie tego sygnału przypisywane jest kondensacji polarytonów i emisji światła koherentnego z tych stanów jak przedyskutowano poniżej. Dodatkowo, obserwowane są dwa punkty w wysokich wartościach wektora falowego ($-4,1 \mu\text{m}^{-1}$ i $4,1 \mu\text{m}^{-1}$) przypisywane rozpraszaniu energii polarytonów do dolnej gałęzi polarytonowej z kondensatu znajdującego się na wyższej gałęzi polarytonowej. Zmiana gęstości mocy pobudzenia pozwala na sterowanie natężeniem linii emisyjnych w $k_{\parallel} = 0$ i kontrolę stosunku intensywności między nimi, w szczególności przełączenie linii dominującej jak pokazuje rysunek 5.2.2 c.

Masy efektywne polarytonów otrzymane z dopasowania do krzywych dyspersji w okolicy $k_{\parallel} = 0$ przedstawionych na rysunku 5.2.2 zależności parabolicznej wynoszą $7,84 * 10^{-5} m_e$ i $5,60 * 10^{-5} m_e$ odpowiednio dla górnej i dolnej gałęzi polarytonowej. Większa masa dla górnej gałęzi wynika większej zawartości frakcji ekscytonowej biorącej udział w tworzeniu poziomu polarytonowego. Jak zostało przytoczone we wstępie teoretycznym niniejszej pracy (rozdział 1) kwadrat modułu współczynników Hopfielda określa względny udział części ekscytonowej i fotonowej w danym poziomie polarytonowym. W przypadku badanego czteropoziomowego systemu zawartość każdego poziomu spełnia równanie $|X|^2 + |C|^2 = |X_1|^2 + |X_2|^2 + |C_S|^2 + |C_{As}|^2 = 1$. W celu wyznaczenia wkładu ekscytonów i fotonów dla wybranego miejsca na próbce, z rysunku 5.2.2 zostały zasymulowane wszystkie poziomy widoczne w pomiarach. Wynik symulacji przedstawiono na rysunku 5.2.3.



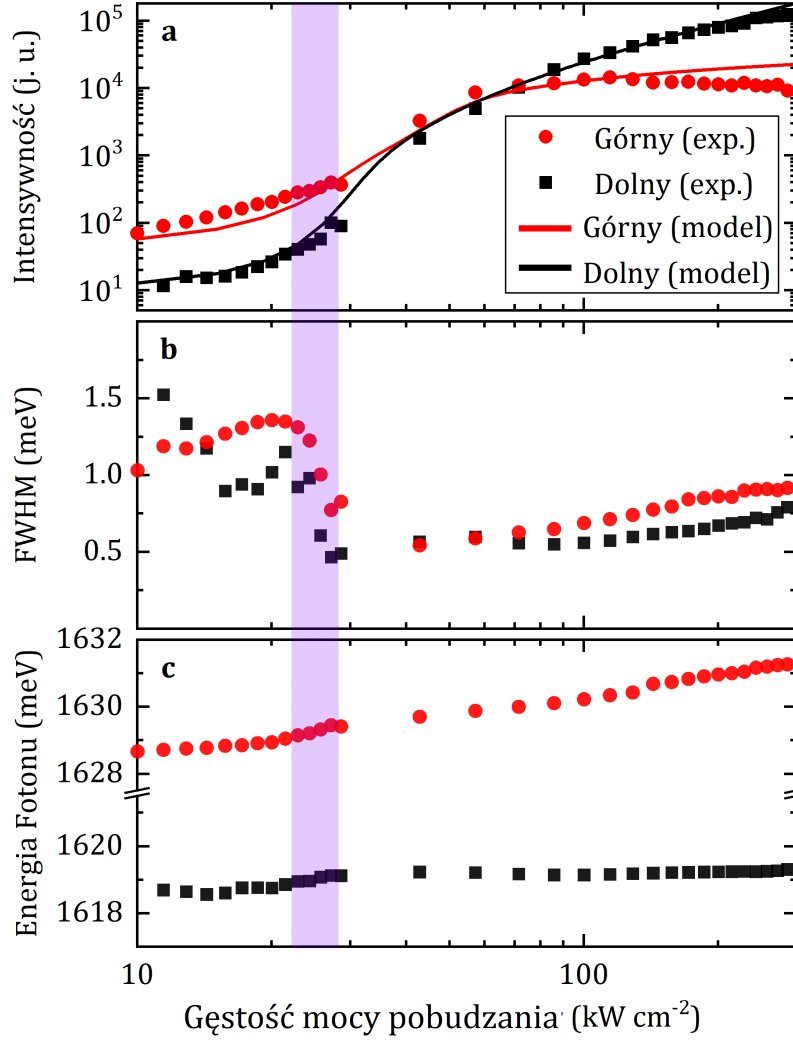
Rysunek 5.2.3: Współczynniki Hopfielda dla wszystkich gałęzi polarytonowych w czteropoziomowym układzie tworzonym przez dwie studnie kwantowe umieszczone w dwóch sprzężonych mikrownękach. **a** Krzywa dyspersji obliczona dla wybranego miejsca na próbce (pozycja 0.7 mm na rysunku 5.2.1) prezentującego laserowanie polarytonowe. **a, b, c, d** Rozkład na współczynniki Hopfielda kolejnych poziomów polarytonów oznaczonych numerami od 1 do 4.

5.2.3 LASEROWANIE Z CZTEROPOZIOMOWEGO SYSTEMU POLARYTONOWEGO

W niniejszym podrozdziale uwaga została skupiona na efektach związanych z dwiema najniższymi gałęziami polarytonowymi w systemie dwóch sprzężonych mikrownęk ze studniami kwantowymi. W celu zbadania nieliniowej charakterystyki wyznaczono w pomiarze zależność emisji w funkcji gęstości mocy pobudzania dla dwóch najniższych poziomów polarytonowych w $k_{\parallel} = 0$ (rysunek 5.2.4). W przypadku obu gałęzi intensywność emisji rośnie nieliniowo o ponad trzy rzędy wielkości przy przejściu przez wartość progową. Przy dalszym wzroście gęstości mocy emisja z wyższego poziomu nasycy się, a sygnał z niższego poziomu rośnie liniowo.

Progowi laserowania w zależności intensywności od mocy pobudzania pokazanemu na rysunku 5.2.4 **a** towarzyszy zawężenie i przesunięcie w kierunku wyższych energii pokazane odpowiednio na rysunkach 5.2.4 **b** i 5.2.4 **c**. Na rysunku 5.2.4 **c** ponadto można dostrzec, że ze względu na większy wkład ekscytonowy, emisja z wyższego poziomu ulega większemu przesunięciu energetycznemu niż z niższego poziomu, gdyż dla górnego poziomu oddziaływania ekscyton-ekscyton są silniejsze. Prezentowana zależność pokazuje, że kondensat polarytonowy tworzy się nie tylko na najniższej gałęzi polarytonowej, lecz na obu badanych poziomach. Aby opisać zależność intensywności emisji od mocy pobudzania, opracowano model teoretyczny bazujący na otwarto-dysypatywnym równaniu Grossa-Pitajewskiego, który szczegółowo został opisany w części 5.4 tego rozdziału.

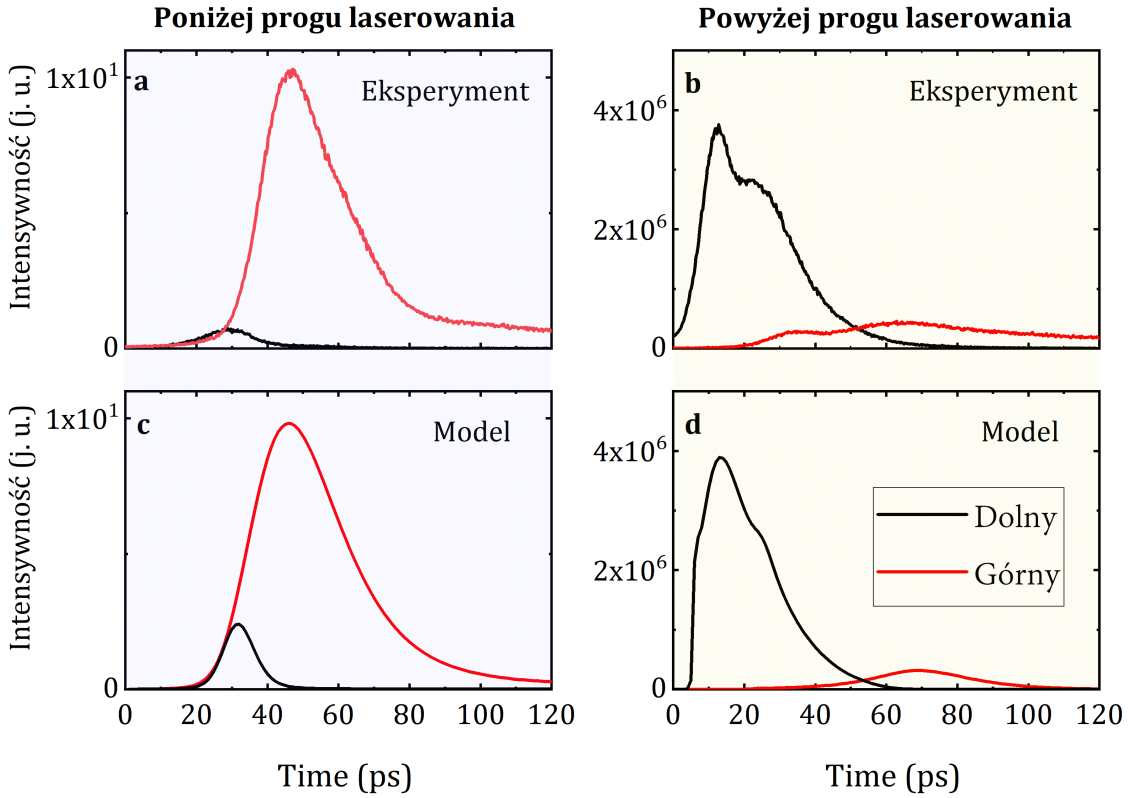
W badanym układzie czteropoziomowym kondensacja i laserowanie polarytonowe zachodzi na dwóch najniższych poziomach, w przeciwieństwie do typowego przypadku dwupoziomowego układu polarytonowego, w którym kondensacja zachodzi w stanie podstawowym, czyli w minimum najniższej gałęzi. Co więcej, próg kondensacji zarówno dla dolnego, jak i górnego poziomu polarytonowego jest porównywalny, w przeciwieństwie do tego, co wcześniej obserwowano w wielomodowych układach ZnO realizowanych w mikroślupkach. [154] Rysunek 5.2.4 **a** pokazuje, że dobór mocy pobudzania pozwala na sterowanie względną intensywnością emisji z górnego i dolnego poziomu. W szczególności możliwe jest przełączenie dominującej linii laserowania z gałęzi dolnej na górną.



Rysunek 5.2.4: Ewolucja właściwości emisyjnych sygnału pochodzącego z minimum dwóch najniższych gałęzi polarytonowych. Pomiar przeprowadzono w warunkach pobudzenia nierezonansowego ($E_{exc} = 1,72$ eV, $\lambda = 720$ nm) w temperaturze 8 K. Widoczne są trzy charakterystyczne cechy zachowania progowego związanego z laserowaniem polarytonowym: **a** nieliniowy wzrost intensywności, **b** zawężenie linii emisyjnej i **c** przesunięcie linii w wyższe wartości energii. Na rysunku **a** punkty oznaczają wartości uzyskane z pomiaru, natomiast ciągłą linią zostało zaprezentowane dopasowanie za pomocą modelu bazującego na otwarto-dysypatywnym równaniu Grossa-Pitajewskiego. Warto zauważyć, że zgodność jest osiągnięta nie tylko powyżej progu kondensacji P_{th} , ale także poniżej niego, gdzie nieliniowości są znacznie słabsze.

5.3 DYNAMIKA LASEROWANIA POLARYTONOWEGO W UKŁADZIE SPRZĘŻONYCH MIKROWNĘK

Rysunek 5.2.4 **a** wskazuje, że dwa kondensaty są kreowane dla zbliżonej wartości mocy progowej. Aby odpowiedzieć na pytanie, jak w tym samym punkcie próbki mogą współistnieć dwa kondensaty polarytonowe o różnej energii, wykonano pomiary fotoluminescencji rozdzielonej czasowo.



Rysunek 5.3.1: **a, b** Eksperymentalna i **c, d** wymodelowana dynamika emisji górnego (czerwona linia) i dolnego (czarna linia) poziomu polarytonu w $k_{\parallel} = 0$. Przedstawione krzywe w **a i c**) są zbierane i obliczane dla gęstości mocy wzbudzenia $0,8 P_{th}$, natomiast dla krzywych w panelach **b i d**) gęstość mocy wzbudzenia wynosi $6,4 P_{th}$.

Czasowe przekroje poprzeczne widm otrzymanych przy pobudzeniu nierezonansowym otrzymane z obrazów pochodzących z kamery smugowej pokazano na rysunku 5.3.1. Dla gęstości pobudzania poniżej P_{th} obsadzenie górnego poziomu wykazującego bardziej ekscytonowy charakter od dolnego pojawia się jako pierwsze i szybko zanika. Po zaniku emisji z wyższego poziomu narasta intensywność niższego poziomu. To samo zachowanie obserwuje się dla gęstości wzbudzenia powyżej P_{th} , jednak intensywność dolnego poziomu jest znacznie wyższa niż poziomu górnego oraz można zaobserwować oscylacyjny charakter krzywej zaniku.

Dane eksperymentalne przedstawione na rysunku 5.3.1 **a** i **b** są bardzo dobrze opisane przez obliczone przebiegi czasowe za pomocą modelu otwarto-dysypatywnego równania Grossa-Pitajewskiego (opisanego w podrozdziale 5.4) pokazane odpowiednio na rysunku 5.3.1 **c** i **d**, zarówno pod względem kształtu zależności czasowej, jak i intensywności. Należy podkreślić, że te same wartości parametrów są używane w opisie fotoluminescencji zarówno czasowo-zintegrowanej, jak i czasowo-rozdzielonej.

5.4 MODEL TEORETYCZNY OPISUJĄCY DYNAMIKĘ POLARYTONÓW

Aby uzyskać głębszy wgląd w mechanizmy rządzące dynamiką polarytonów i laserowania w badanym układzie wykonano symulacje numeryczne. Model opisujący intensywność fotoluminescencji zintegrowanej w czasie i dynamikę emisji z podwójnej sprzężonej mikrownęki optycznej opiera się na równaniach Grossa-Pitajewskiego sprzężonych z równaniami kinetycznymi, które opisują przejście z rezerwuaru ekscytonów do gałęzi polarytonowych. Inspiracją dla jego powstania były prace [45, 53, 155].

Model zakłada obecność jednego nieaktywnego rezerwuaru ekscytonów w wysokiej energii powstającego w wyniku pobudzania impulsowego oraz dwóch aktywnych rezerwuarów, na dwóch najniższych gałęziach polarytonowych. [45, 156]. Pary elektron-dziura utworzone przez nierezonansowe pobudzenie impulsowe z równą wydajnością w obu mikrownękach [157] gromadzą się w nieaktywnym rezerwuarze. Następnie z nieaktywnego rezerwuaru relaksują do aktywnego rezerwuaru w wysokich wartościach energii i pędu dolnej oraz górnej gałęzi polarytonowej. [45, 58, 158, 159] Polarytony osiągają minimum gałęzi polarytonowych

w wyniku relaksacji wzdłuż gałęzi polarytonowych poprzez oddziaływanie z fononami akustycznymi. Gdy gęstość polarytonów jest dostatecznie wysoka, stymulowane rozpraszanie do minimum gałęzi polarytonowej przyspiesza relaksację i ostatecznie indukuje kondensację polarytonów w dolnej części gałęzi. Model zawiera również bezpośredni transfer z górnej do dolnej gałęzi polarytonowej przy $k_{\parallel} = 0$. Mechanizm schematyczny został zaprezentowany na rysunku 5.4.1.

Nieaktywny rezerwuar pompowany nierezonansowo opisany jest następującym równaniem kinetycznym:

$$\frac{\partial n_I(t)}{\partial t} = -\left(\gamma_I + r_U + r_L\right)n_I(t) + P(t), \quad (5.8)$$

gdzie γ_I jest prędkością zaniku populacji nieaktywnego rezerwuaru $n_I(t)$, r_U i r_L opisują transfer z nieaktywnego do aktywnych rezerwuarów odpowiednio dla górnej i dolnej gałęzi polarytonowej, a $P(t)$ jest wyrażeniem opisującym pompowanie. W modelowaniu założono, że układ jest pobudzany impulsem o gaussowskim profilu czasowym wyrażonym równaniem $P(t) = \exp[-(t - 4[\sigma])^2/(2[\sigma]^2)]$ z parametrem $\sigma = 4$, który odpowiada impulsowi o połówkowym czasie trwania wynoszącym 10 ps.

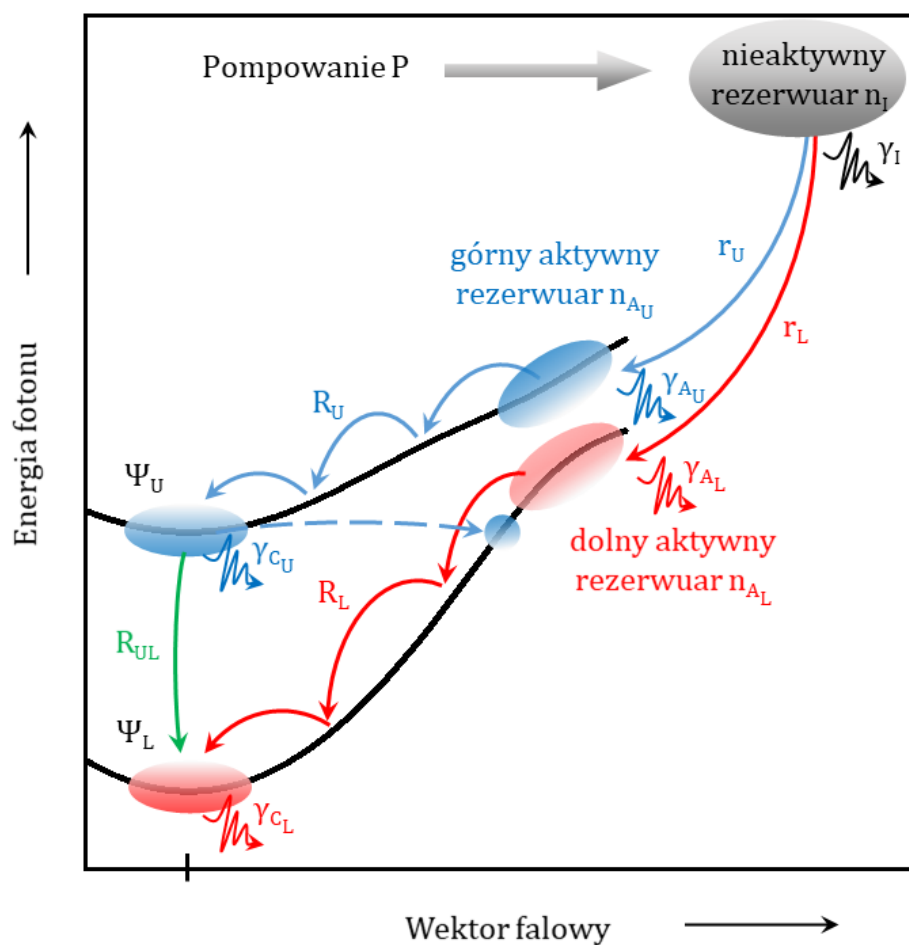
Równania kinetyczne aktywnych rezerwuarów opisane są w następujący sposób:

$$\frac{\partial n_{AU}(t)}{\partial t} = -\left(\gamma_{AU} + R_U|\psi_U(t)|^2\right)n_{AU}(t) + n_I(t)r_U, \quad (5.9)$$

$$\frac{\partial n_{AL}(t)}{\partial t} = -\left(\gamma_{AL} + R_L|\psi_L(t)|^2\right)n_{AL}(t) + n_I(t)r_L, \quad (5.10)$$

gdzie γ_{AU} i γ_{AL} są odpowiednio prędkościami zaniku aktywnych rezerwuarów $n_{AU}(t)$ i $n_{AL}(t)$, a R_U (R_L) jest prędkością transferu z aktywnego rezerwuaru na górnej (dolnej) gałęzi do dna górnej (dolnej) gałęzi polarytonowej. Funkcje falowe polarytonów z górnej i dolnej gałęzi polarytonowej oznaczone zostały odpowiednio jako $\psi_U(t)$ oraz $\psi_L(t)$.

Równania opisujące funkcje falowe polarytonów z górnej i dolnej gałęzi polarytonowej



Rysunek 5.4.1: Schemat poziomów i procesów transferów przyjętych w modelu opisującym dynamikę emisji z dwóch najniższych gałęzi polarytonowych w układzie sprzężonych mikrowęzłów z dwoma zestawami studni kwantowych.

przyjmują następującą postać:

$$i\hbar \frac{\partial \psi_U(t)}{\partial t} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m_U} + g_{RU} n_{AU}(t) + g_U |\psi_U(t)|^2 - \frac{i\hbar}{2} [\gamma_{CU} - R_U n_{AU}(t) + R_{UL} |\psi_L(t)|^2] \right) \psi_U(t), \quad (5.11)$$

$$i\hbar \frac{\partial \psi_L(t)}{\partial t} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m_L} + g_{RL} n_{AL}(t) + g_L |\psi_L(t)|^2 - \frac{i\hbar}{2} [\gamma_{CL} - R_L n_{AL}(t) - R_{UL} |\psi_L(t) \psi_U(t)|] \right) \psi_L(t), \quad (5.12)$$

Współczynniki γ_{CU} i γ_{CL} w równaniu 5.11 i 5.12 są prędkościami zaniku radiacyjnego z dna górnej i dolnej gałęzi polarytonowej, natomiast R_{UL} jest prędkością transferu z górnej do dolnej gałęzi polarytonowej. Stała R_{UL} reprezentuje wszystkie procesy powodujące transfer polarytonów z dna górnej do dna dolnej gałęzi polarytonowej. Stałe g_U, g_L oraz g_{RU}, g_{RL} oznaczają odpowiednio siłę oddziaływań polaryton-polaryton oraz ekscyton-polaryton dla odpowiedniej gałęzi polarytonowej. Zakładając, że stała sprzężenia ekscyton-ekscyton wynosi $g_{exc} \approx \frac{6e^2 a_B}{\epsilon A}$ [28], oszacowano stałe oddziaływań dla każdej gałęzi polarytonu według wzoru $g_R = |X|^2 g_{exc}$ i $g = |X|^4 g_{exc}$, gdzie $|X|^2$ jest frakcją ekscytonową odpowiedniego polarytonu przy $k_{||} = 0$. W przypadku układów polarytonowych pobudzanych nierezonansowo rozważanych w tej pracy, oddziaływanie polarytonów z rezerwuarem ekscytonów jest silniejsze niż oddziaływania polaryton-polaryton. Obliczone wartości stałych użytych w symulacjach są następujące: $g_{RU} = 2,19 \mu\text{eV } \mu\text{m}^2$, $g_{RL} = 0,15 \mu\text{eV } \mu\text{m}^2$, $g_U = 8,10 \mu\text{eV } \mu\text{m}^2$, $g_L = 2,10 \mu\text{eV } \mu\text{m}^2$. Większa zawartość zawartości ekscytonowej w polarytonie determinuje większe wartości stałych charakteryzujących oddziaływanie dla górnej gałęzi.

Intensywność emisji w funkcji czasu następującego po impulsie wzbudzenia dla górnej i dolnej gałęzi polarytonowej jest obliczana jako $\psi_U(t)\gamma_{CU}$ i $\psi_L(t)\gamma_{CL}$. Całkowanie tych intensywności po czasie daje intensywności emisji otrzymywane w pomiarze fotoluminescencji zintegrowanej czasowo.

W dopasowaniu modelu do danych eksperymentalnych pochodzących z pomiaru fotoluminescencji w funkcji mocy pobudzania prezentowanym na rysunku 5.2.4 **a** wartość pompy P zmienia się, podczas gdy wszystkie parametry są ustalone w całym zakresie mocy pompowania. Poniższy zestaw parametrów zapewnia bardzo dobrą zgodność modelu z danymi zintegrowanymi i rozdzielonymi w czasie: $\hbar\gamma_I = 0,025 \text{ } \mu\text{eV}$, $\hbar\gamma_{AU} = \hbar\gamma_{AL} = 0,3 \text{ } \mu\text{eV}$, $\hbar r_U = 0,036 \text{ } \mu\text{eV } \mu\text{m}^2$, $\hbar r_L = 0,015 \text{ } \mu\text{eV } \mu\text{m}^2$, $\hbar R_U = 0,022 \text{ } \mu\text{eV } \mu\text{m}^2$, $\hbar R_L = 0,2 \text{ } \mu\text{eV } \mu\text{m}^2$, $\hbar R_{UL} = 0,15 \text{ } \mu\text{eV } \mu\text{m}^2$, $\hbar\gamma_{CU} = 0,1 \text{ } \mu\text{eV}$, $\hbar\gamma_{CL} = 1 \text{ } \mu\text{eV}$.

Stałe opisujące prędkość zaniku γ_I , γ_{AU} i γ_{AL} wskazują, że nieaktywny rezerwuuar zanika wolniej w stosunku do aktywnych, czego powodem jest wyższa wartość pędu nośników tworzących nieaktywny rezerwuuar niż tworzących aktywne rezerwuary na gałęziach polarytonowych. Kondensaty utworzone w minimum tych gałęzi zanikają szybciej niż nośniki w stanie nieskondensowanym (w rezerwuarach). Ponadto, stałe opisujące szybkość zaniku kondensatów spełniają nierówność $\gamma_{CL} > \gamma_{CU}$, czego powodem jest większa zawartość wkładu fotonowego w dolnej gałęzi polarytonowej niż w górnej gałęzi.

Prędkość transferu do aktywnego rezerwuaru r_U zlokalizowanego na górnej gałęzi polarytonowej jest większa niż do dolnej r_L , ponieważ transfer ekscytonów z nieaktywnego rezerwuaru (o charakterze głównie ekscytonowym) jest wydajniejszy w przypadku gdy zachodzi on dla gałęzi wykazującej podobną zawartość ekscytonową.

Dopasowanie modelu do danych wskazuje na to, że kolejność pojawiania się emisji zarówno z dna dolnej i górnej gałęzi jest regulowana przez zależność między stałymi szybkości transferu z aktywnego rezerwuaru do tych poziomów polarytonowych, niezależnie od mocy pobudzania. Mianowicie, emisja z niższego poziomu następuje przed emisją z wyższego poziomu, co wynika z wyższej wartości stałej szybkości transferu z aktywnego rezerwuaru na niższy poziom niż na wyższy poziom. Natomiast kondensacja jest szybsza dla niższego poziomu, ponieważ przy mniejszej zawartości ekscytonowej mniejszy wpływ mają oddziaływania ekscyton-ekscyton.

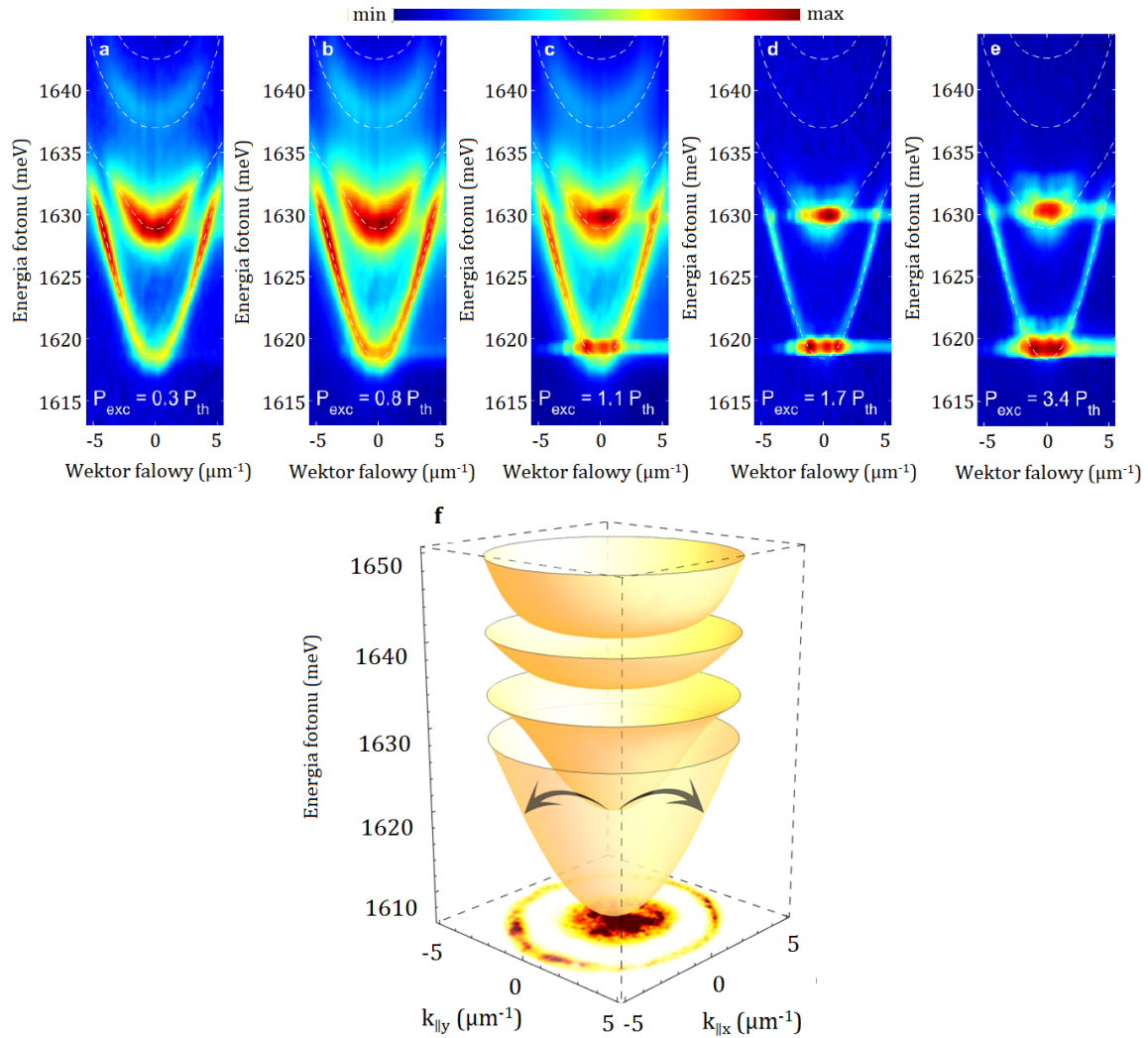
Na względny stosunek intensywności emisji z dolnego do górnego poziomu wpływają zarówno prędkości transferu, jak i czasy zaniku populacji polarytonów na tych poziomach. Zależność ta może być sformułowana następująco: poniżej progu kondensacji P_{th} , im krótszy jest czas życia, tym silniejsza emisja danego poziomu dla dość szerokiego zakresu wartości

współczynników prędkości transferu, podczas gdy powyżej P_{th} rola transferu staje się dominująca. Z kolei nasycenie intensywności emisji z górnego poziomu powyżej P_{th} wynika z wydajnego transferu kondensatu z górnego do dolnego poziomu. Możliwym mechanizmem transferu międzygałęziowego w $k_{\parallel} = 0$ jest relaksacja energii wspomagana przez emisję fononów akustycznych lub rozpraszanie polarytonów zdegenerowanych w pędzie. [127] Oscylacje w zaniku emisji są konsekwencją obecności nieaktywnego rezerwuaru i współzawodnictwa w budowaniu populacji polarytonów w górnej i dolnej gałęzi polarytonowej.

5.5 ROZPRASZANIE PARAMETRYCZNE POLARYTONÓW ZDEGENEROWANE W ENERGII

Utworzeniu kondensatu polarytonowego na górnym poziomie towarzyszy pojawienie się sygnału w dyskretnych punktach w wysokiej wartości $k_{\parallel}$ najniższej gałęzi polarytonowej, co zostało pokazane wcześniej na rysunku 5.2.2 **b**, który prezentował wybrane widmo dla mocy pobudzania powyżej progu laserowania. Te dyskretne punkty są rozmieszczone symetrycznie wokół $k_{\parallel} = 0$, w $k_l = -4,1 \mu m^{-1}$ i $k_r = 4,1 \mu m^{-1}$, w energii 1630,5 meV (dla mocy pobudzania $85 kWcm^{-2}$), czyli energii kondensatu utworzonego na górnym poziomie polarytonowym. Obecność takich punktów interpretowana jest jako przejaw zdegenerowanego w energii rozpraszania parametrycznego polarytonów z górnej do dolnej gałęzi polarytonowej.

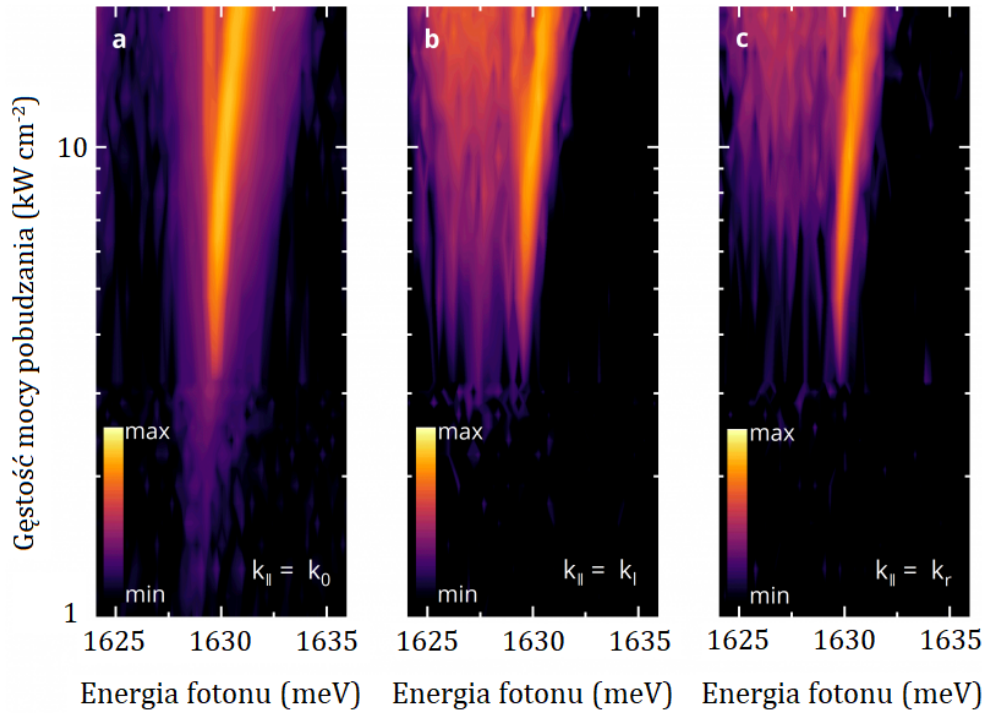
Rysunki 5.5.1 **a-e** przedstawiają ewolucję widma fotolumiencji z rozdzielczością pędową w funkcji gęstości mocy wzbudzenia i pozwala prześledzić etapy powstawania kondensatu oraz sygnału powstałego w wyniku zdegenerowanego w energii rozpraszania parametrycznego polarytonów. Wraz ze wzrostem mocy i tworzeniem się kondensatu w górnej gałęzi w wysokich wartościach wektora falowego na najniższej gałęzi polarytonu pojawiają się dyskretne punkty (rysunek 5.5.1 **f**). Wskazuje to, że nawet w warunkach pobudzania nierezonansowego, efektywne rozpraszanie parametryczne polarytonów zdegenerowanych w energii jest możliwe i do jego utworzenia wymagany jest kondensat na wyższej gałęzi polarytonowej. W ten sposób kondensat polarytonowy na dnie górnego poziomu działa podobnie jak pompowanie rezonansowe dostrojone do minimalnej energii górnej gałęzi



Rysunek 5.5.1: Ewolucja rozdzielonych kątowno widm fotoluminescencji układu dwóch mikrownęk z dwoma studniami kwantowymi wraz ze wzrostem gęstości mocy pobudzania dla **a** $0,3 P_{th}$ **b** $0,8 P_{th}$ **c** $1,1 P_{th}$ **d** $1,7 P_{th}$ **e** $3,4 P_{th}$, gdzie P_{th} jest równe 25 kW cm^{-2} . Na rysunku zastosowano wspólną skalę intensywności dla obrazów **a-e**. Poziomy cień po prawej stronie obrazu w energii kondensatu polarytonu jest artefaktem pomiarowym związanym z małą szybkością odczytu danych przez kamerę CCD. **f** Dyspersja polarytonów w układzie czteropoziomowym ze zdegenerowanym energetycznie procesem rozpraszania parametrycznego pokazanym schematycznie strzałkami.

polarytonowej.

Rysunek 5.5.2 prezentuje widma emisji z trzech obszarów wybranych z obrazów fotoluminescencji rozdzielonej kątowno w regionie: $k_{\parallel} = 0$, $k_{\parallel} = k_l$ i $k_{\parallel} = k_r$, w zakresie energii 1624-1636 meV, w funkcji gęstości mocy wzbudzenia. Prezentowane widma zostały uzyskane w wyniku sumowania sygnału zarejestrowanych dla wartości wektorów falowych w zakresie k_0 - $-3,7 < k < 3,7 \mu\text{m}^{-1}$), k_l - $-5,3 < k < -3,8 \mu\text{m}^{-1}$) i k_r - $3,8 < k < 5,3 \mu\text{m}^{-1}$.



Rysunek 5.5.2: Ewolucja widm fotoluminescencji wraz ze wzrostem gęstości mocy wzbudzenia dla wybranych obszarów z obrazu fotoluminescencji rozdzielonej kątowno **a** k_0 (zakres sumowania intensywności $-3,7 < k < 3,7 \mu\text{m}^{-1}$), **b** k_l (zakres sumowania intensywności $-5,3 < k < -3,8 \mu\text{m}^{-1}$), **c** k_r (zakres sumowania intensywności $3,8 < k < 5,3 \mu\text{m}^{-1}$). Ta sama skala kolorów (skala logarytmiczna) jest używana dla wszystkich trzech paneli. Artefakt widoczny na rysunku 5.5.1 w energii kondensatu po prawej stronie obrazu został na niniejszym rysunku usunięty aby pokazać w sposób niezakłócony intensywności sygnałów.

Na każdym obrazku można zaobserwować przesunięcie sygnału w stronę wyższych energii z około 1629 meV do około 1631 meV i nieliniowy wzrost intensywności. Ewolucja kształtu linii widmowych ze wzrastającą mocą wzbudzenia we wszystkich trzech przypadkach jest zbliżona, co dodatkowo potwierdza wniosek, że sygnał powstający w dyskretnych punktach powstaje w wyniku rozpraszania polarytonów z górnej gałęzi polarytonowej. Sygnał przy k_l i k_r pojawia się po przekroczeniu progowej mocy kondensacji w górnej gałęzi polarytonowej. Brak sygnału przy $k_{||} = k_l$ i $k_{||} = k_r$ dla mocy wzbudzenia poniżej progu wskazuje, że reabsorpcja światła emitowanego z $k_{||} = 0$ nie może wyjaśnić obecności punktowej emisji przy $k_{||} = k_l$ i $k_{||} = k_r$. Na rysunkach 5.5.1 a-c widoczny jest jedynie szeroki spektralnie sygnał pochodzący od nieskondensowanych polarytonów.

Za proces zdegenerowanego w energii parametrycznego rozpraszania polarytonów odpowiedzialny jest mechanizm, w którym anihilacja dwóch polarytonów o wartości wektora falowego $k_{||} = 0$ poprzedza kreację dwóch polarytonów z wektorami falowymi k_l i k_r . Taki proces spełnia zasadę zachowania pędu $k_0 = k_r + k_l = 0$ oraz zasadę zachowania energii. Rozpraszanie jest ułatwione dzięki ujemnym wartości odstrojenia i wynikającej z tego stosunkowo niskiej zawartości frakcji ekscytonowej w polarytonach (0,27 dla górnej gałęzi i 0,07 dla dolnej gałęzi polartonej), co wpływa na zmniejszenie absorpcji. Emisja w k_l i k_r pojawia się tylko dla gęstości pobudzenia powyżej P_{th} i nie jest obserwowana poniżej P_{th} . We wcześniejszych badaniach nad planarnymi sprzężonymi mikrownkami zdegenerowane energetycznie parametryczne rozpraszanie zostało osiągnięte tylko poprzez dostrojenie pobudzenia do wartości rezonansowej z dolną częścią górnej gałęzi polarytonu. [137, 138, 160] Zastosowanie wzbudzenia nierezonansowego do przygotowania kondensatu umożliwia czystą obserwację efektów rozpraszania dzięki widmowej separacji pobudzenia i mierzonego sygnału i upraszcza eksperyment.

5.6 PODSUMOWANIE

Głównym wynikiem badań zawartych w tym rozdziale jest obserwacja procesów nieliniowych w polarytonowym układzie wielopoziomowym. Wyniki przeprowadzonych badań potwierdziły możliwość zaobserwowania laserowania polarytonowego z dwóch gałęzi

polarytonowych ze wspólnym progiem laserowania. Przeprowadzone pomiary rozdzielone czasowo wykazały, że kondensaty nie są tworzone jednocześnie po impulsie wzbudzającym, lecz pojawiają się i zanikają kolejno jeden po drugim. Zaproponowany model teoretyczny bazujący na równaniach Grossa-Pitajewskiego sprzężonych z równaniami kinetycznymi reprezentującymi nieaktywny i aktywne rezerwuary ekscytonów właściwie opisuje zarówno zintegrowaną w czasie intensywność emisji, jak i dynamikę emisji. Daje również wgląd w procesy rządzące dynamiką polarytonów w systemie wielopoziomowym. Efektem towarzyszącym laserowaniu z kondensatu Bosego-Einsteina polarytonów w układzie dwóch sprzężonych mikrownęk jest parametryczne rozpraszanie polarytonów zdegenerowane w energii zaobserwowane po raz pierwszy w systemie mikrownęki typu VCSEL pod pobudzaniem nierezonansowym. Wskazuje to, że kondensat utworzony przez nierezonansowe wzbudzenie może zastąpić rezonansową wiązkę pobudzającą. Przygotowany w ten sposób kondensat może ułatwić badania rozpraszania polarytonów, które typowo wymagają zastosowania filtrów przestrzennych w celu usunięcia silnego sygnału pochodzącego od lasera pobudzającego.

Badania prowadzące do zrozumienia zjawisk nieliniowych, w tym kondensacji i międzygałęziowego rozpraszania polarytonów w wielopoziomowych układach polarytonowych, są istotne z punktu widzenia rozwoju takich dziedzin jak fotonika topologiczna czy polarytronika. Wysoki stopień przestrajalności zaproponowanego w tym rozdziale systemu powinien pozwolić na badanie różnych kanałów rozpraszania polarytonów zdegenerowanych w energii lub pędzie przy pompowaniu nierezonansowym. Możliwość domieszkowania manganem studni kwantowych otwiera perspektywy naturalnego rozszerzenia badań na zjawiska związane ze spinem, takie jak kontrola kondensacji polarytonów w układzie wielopoziomowym za pomocą pola magnetycznego. Z kolei mikrostrukturyzacja struktury utworzyłaby ekscytujące perspektywy badań efektów nieliniowych w dynamicznie rozwijającej się dziedzinie fotonicznych sieci polarytonowych. W szczególności podwójna mikrownęka powinna umożliwić obserwację trójwymiarowego transferu polarytonów, zachodzącego w dwóch kierunkach: równoległym i prostopadłym do płaszczyzny mikrownęki. Oprócz wartości dla badań podstawowych prezentowane wyniki mogą mieć również znaczenie dla zastosowań praktycznych, np. w realizacji przestrajalnych wielomodowych źródeł koherentnego światła z niskim progiem laserowania lub zintegrowanych, całkowicie optycznych urządzeń wykonujących operacje logiczne.

Na przykład zależne od mocy wzbudzenia, przełączanie intensywności i przesunięcie w stronę wyższych energii emisji z dwóch dolnych gałęzi polarytonowych zapewniają dwa wyjścia, które umożliwiają realizację całkowicie optycznych bramek dwukubitowych.

Science is not and will never be a closed book. Every important advance brings new questions. Every development reveals, in the long run, new and deeper difficulties.

— Albert Einstein, Leopold Infeld
The Evolution of Physics, 1938

6

Podsumowanie i perspektywy na przyszłość

W niniejszej rozprawie przedstawione zostały badania efektów laserowania z półprzewodnikowych mikrownęk optycznych wykonanych z pierwiastków pochodzących z grup II-VI układu okresowego. Do realizacji założeń pracy wykorzystano struktury selenkowe i tellurkowe z pojedynczą mikrownęką oraz sprzężonym układem mikrownęk opartych na materiałach tellurkowych, które są rzadziej wykorzystywane w zastosowaniach fotonicznych niż analogiczne materiały pochodzące z grup III-V. Wybrane systemy materiałowe charakteryzują się relatywnie dużą siłą oscylatora ekscytonu, w związku z czym wykazują mniejszą wrażliwość na warunki prowadzenia eksperymentu, umożliwiając tym samym badanie zjawisk trudnych lub niemożliwych do zaobserwowania w strukturach bazujących na systemach materiałowych III-V.

Dzięki wykorzystaniu nowego systemu materiałowego i specjalnie zaprojektowanej struktury możliwe było zaobserwowanie po raz pierwszy trzech progów laserowania różnego typu

w emisji z pojedynczej studni kwantowej umieszczonej w mikrownęce optycznej. Do tego celu wykorzystano niebadaną do tej pory strukturę zawierającą selenkową studnię kwantową w mikrownęce dopasowanej sieciowo do ZnTe. W warunkach silnego sprzężenia światło-materia umożliwiła ona obserwację laserowania polarytonowego wynikającego ze stymulowanego rozpraszania mikrownękowych polarytonów ekscytonowych. Dla tej samej struktury w warunkach silnego pobudzania zaobserwowano dwa typy laserowania fotonowego w reżimie słabego sprzężenia opierające się na jednym z dwóch mechanizmów: stymulowanej rekombinacji ekscytonów lub stymulowanej rekombinacji plazmy elektronowo-dziurowej. Do tej pory tylko jeden lub dwa z tych trzech wymienionych reżimów opisywano dla jednej struktury niezależnie od badanego systemu materiałowego. W pracy przedyskutowano również wpływ pułapek fonicznych, powstających spontanicznie podczas wzrostu epitaksjalnego, na lokalne wzmocnienie emisji. Ustalono nieustanowione do tej pory zależności między wartościami progowymi gęstości mocy, które odpowiadają początkowi reżimów laserowania, które różnią się siłą sprzężenia światło-materia oraz stopniem oddziaływania kulombowskiego pary elektron-dziura.

W pracy wykazano również, że zastosowanie supersieci studni kwantowych jako emitera powoduje znaczne zwiększenie siły oscylatora ekscytonu, która przekłada się na silniejsze oddziaływanie światło materia oraz obniżenie progu laserowania polarytonowego. Ponadto, zaproponowano wzbudzenie fotoluminescencji jako metodę wyznaczania wartości rozszczepienia Rabiego w systemach polarytonowych, w których niemożliwe lub znacząco utrudnione jest bezpośrednie uzyskanie tej wartości w pomiarach odbicia, lub fotoluminescencji.

Rozszerzeniem badań nad strukturami z pojedynczą mikrownką była obserwacja laserowania polarytonowego i jego dynamiki w układzie dwóch sprzężonych wertykalnie mikrownkach planarnych. Wzajemne oddziaływanie modów wnękowych z ekscytonami w studniach kwantowych umieszczonych w mikrownkach prowadzi do postania wielogałęziowego systemu polarytonowego z odseparowanymi spektralnie liniami emisyjnymi. Emisja z dwóch najniższych gałęzi polarytonowych wykazuje nieliniowy wzrost intensywności, przesunięcie w wyższe energie i zawężenie wskazujące na efekt laserowania polarytonowego. Próg laserowania dla obu gałęzi jest wspólny. Specyfika systemu opartego na dwóch klinowych mikrownkach pozwala na zmianę odstrojenia między modem wnękowym i ekscytonami.

W pomiarach zależności od mocy zaobserwowano zmianę relatywnej intensywności linii emisyjnych, w szczególności zmianę linii o dominującej intensywności. W badanym systemie wzajemne oddziaływanie modów polarytonowych oraz oddziaływanie z rezerwuarem ekscytonów skutkuje złożoną dynamiką zaniku emisji. Pomiary z rozdzielczością czasową wykazały występowanie oscylacji relaksacyjnych między dwoma najniższymi gałęziami polarytonowymi oraz konkurencję między nimi w budowaniu populacji polarytonów na dwóch najniższych gałęziach. Wynikają one ze sprzężenia gałęzi polarytonowych z rezerwuarem ekscytonów oraz międzygałęziowego transferu energii w wielopoziomowym układzie polarytonowym. Wyniki eksperymentalne zostały opisane modelem teoretycznym opartym otwarto-dysypatywnych równaniach Grossa-Pitajewskiego, który wykazał wysoką zgodność z doświadczeniem zarówno, poniżej jak i powyżej progu laserowania. Ponadto, zaobserwowano zdegenerowane w energii rozpraszanie parametryczne polarytonów. W przeciwieństwie do poprzednich prac użyto pobudzania nierezonansowego, zastępując stosowane dotąd optyczne pompowanie rezonansowe kondensatem Bosego-Einsteina polarytonów wykreowanym na górnej gałęzi polarytonowej. Pozwala to na przygotowanie kondensatu na wyższej gałęzi polarytonowej i czystą obserwację procesu zdegenerowanego w energii rozpraszania dzięki separacji spektralnej wzbudzenia i sygnału.

Pod względem przyszłych kierunków wykazano, że użycie materiału aktywnego CdSe zarówno w postaci pojedynczej studni, jak i supersieci daje duże możliwości rozszerzenia dotychczasowych badań prowadzonych na mikrownękach na bazie materiałów II-VI. W szczególności relatywnie duża siła oscylatora tego materiału determinuje wysoką wartość siły sprzężenia ekscyton-foton, co daje szansę na wytworzenie struktur polarytonowych pracujących w wyższych temperaturach. Taki postęp technologiczny dałby realne szanse na komercyjne zastosowanie emiterów koherentnego światła wykorzystujących efekty polarytonowe.

Duże możliwości strojenia układu sprzężonych wertykalnie mikrownęk powinny umożliwić obserwację rozpraszania parametrycznego polarytonów zdegenerowanego w pędzie pod pobudzeniem nierezonansowym. Konfiguracja wertykalna poszerza pole badań sprzężonych systemów mikrownękowych, do tej pory badanych głównie w konfiguracji horyzontalnej poprzez mikrostrukturyzację pojedynczej mikrownęki planarnej. Otwiera to nowe możliwości budowania fotonicznych symulatorów kwantowych opartych na coraz bardziej złożonych sieciach

polarytonowych, w których oddziaływanie między kondensatami polarytonów odbywa się zarówno w kierunku horyzontalnym jak również wertykalnym.

Oprócz wartości nowatorskiej dla badań podstawowych wyniki te mają również duże znaczenie dla zastosowań praktycznych, takich jak np. realizacja przestrajalnych i przełączalnych źródeł światła koherentnego o kilku niskich progach laserowania lub opracowanie zintegrowanych, całkowicie optycznych urządzeń wykonujących operacje logiczne. Przełączanie intensywności zależne od mocy i przesunięcie w stronę wyższych energii sygnałów z dwóch najniższych gałęzi polarytonowych mogą pozwolić na realizację całkowicie optycznych bramek dwukubitowych.

DOROBK NAUKOWY AUTORA PRACY

WYNIKI PRZEDSTAWIONE W TEJ PRACY CZĘŚCIOWO ZOSTAŁY OPUBLIKOWANE W NASTĘPUJĄCYCH PUBLIKACJACH:

1. Krzysztof Sawicki, Thomas J. Sturges, Maciej Ściesiek, Tomasz Kazimierczuk, Kamil Sobczak, Andrzej Golnik, Wojciech Pacuski, Jan Suffczyński
Polariton lasing and energy-degenerate parametric scattering in non-resonantly driven coupled planar microcavities,
(w recenzji) *arXiv:2102.06812*.
2. Maciej Ściesiek, Krzysztof Sawicki, Wojciech Pacuski, Kamil Sobczak, Tomasz Kazimierczuk, Andrzej Golnik, Jan Suffczyński
Long-Distance Energy Transfer between Exciton States in Magnetically Controlled Microcavities,
Communications Materials 1, 78 (2020).

3. Krzysztof Sawicki, Magdalena Jurczak, Wojciech Pacuski, Jan Suffczyński
Direct Interbranch Relaxation of Polaritons in a Microcavity with Embedded CdSe/(Cd,Mg)Se Quantum Wells,
Journal of Electronic Materials 49, 4531–4536 (2020).
4. Krzysztof Sawicki, Jean-Guy Rousset, Rafał Rudniewski, Wojciech Pacuski,
 Maciej Ściesiek, Tomasz Kazimierczuk, Kamil Sobczak, Jolanta Borysiuk,
 Michał Nawrocki, Jan Suffczyński
Triple threshold lasing from a photonic trap in a Te/Se-based optical microcavity,
Communications Physics 2, 38 (2019).

CZĘŚĆ WYNIKÓW OPISANYCH W NINIEJSZEJ PRACY ZOSTAŁA ZAPREZENTOWANA
 NA KONFERENCJACH O ZASIĘGU MIĘDZYNARODOWYM

Prezentacje ustne:

1. APS March Meeting 2021,
Polariton lasing in nonresonantly driven coupled planar microcavities, Stany Zjednoczone 2021
 (konferencja przeprowadzona w formie online)
2. 19th International Conference on II-VI Compounds and Related Materials,
Triple threshold lasing from a photonic trap in a Te/Se-based optical microcavity
 Zhengzhou (Chiny) 2019.
3. 19th International Conference on II-VI Compounds and Related Materials,
Determination of vacuum Rabi splitting of exciton-polaritons in microcavity with CdSe/MgSe quantum wells by photoluminescence excitation
 Zhengzhou (Chiny) 2019.

4. 9th International Conference on Spontaneous Coherence in Excitonic Systems,
Exploring full space of lasing regimes in the emission from photonic traps in Te/Se based optical microcavity embedding a single quantum well
Montreal (Kanada) 2018.
5. 47th „Jaszowiec” International School & Conference on the Physics of Semiconductors,
Polariton lasing from double coupled microcavities
Szczyrk (Polska) 2018.
6. 11th OPTO 2017,
Lasing from a microcavity embedding a CdSe/(Cd, Mg)Se superlattice
Warszawa (Polska) 2017.
7. 46th „Jaszowiec” International School & Conference on the Physics of Semiconductors,
Lasing from a Se-based microcavity embedding a CdSe/(Cd, Mg)Se superlattice
Szczyrk (Polska) 2017.
8. 45th „Jaszowiec” International School & Conference on the Physics of Semiconductors,
Room temperature polariton lasing in a ZnTe based microcavity containing a single CdSe/(Cd,Mg)Se quantum well
Szczyrk (Polska) 2016.
9. 44th „Jaszowiec” International School & Conference on the Physics of Semiconductors,
Towards increased extraction of the light emitted by epitaxially grown quantum dots
Wisła (Polska) 2015.

Prezentacje plakatowe:

1. 20th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures,
Triple threshold lasing from a photonic trap in a Te/Se-based optical microcavity
Clermont-Ferrand, France 2020 (konferencja przeprowadzona w formie online)
2. 48th „Jaszowiec” International School & Conference on the Physics of Semiconductors,
Polariton dynamics in double coupled microcavities
Szczyrk (Polska) 2019 (praca wyróżniona nagrodą za najlepszą prezentację plakatową)

3. 18th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures,
Lasing from a CdSe/(Cd,Mg)Se superlattice embedded in a ZnTe based microcavity
Würzburg (Niemcy) 2017.
4. 34th International Conference on the Physics of Semiconductors,
Lasing from a CdSe/(Cd,Mg)Se quantum well embedded into a microcavity in a strong and weak coupling regime
Montpellier (Francja) 2018.

POZOSTAŁY DORÓBEK NAUKOWY AUTORA NIEZWIĄZANY BEZPOŚREDNIO Z PRACĄ:

1. Omar Jamadi, Bastian Real, Krzysztof Sawicki, Nicolas Pernet, Isabelle Sagnes, Aristide Lemaître, Luc Le Gratiet, Abdelmounaim Harouri, Sylvain Ravets, Jacqueline Bloch, Alberto Amo, *Extreme localisation of light in driven-dissipative photonic lattices*
(w przygotowaniu).
2. Wojciech Pacuski, Jean-Guy Rousset, Valentin Delmonte, Tomasz Jakubczyk, Kamil Sobczak, Jolanta Borysiuk, Krzysztof Sawicki, Elżbieta Janik, Jacek Kasprzak, *Antireflective photonic structure for coherent nonlinear spectroscopy of single magnetic quantum dots*,
Crystal Growth & Design 17, 6, 2987–2992 (2017).
3. Joanna Papierska, Anna Ciechan, Piotr Bogusławski, Mostafa Boshta, Mohamed M. Gomaa, Ekaterine Chikoidze, Yves Dumont, Aneta Drabińska, Hanka Przybylińska, Anita Gardias, Jacek Szczytko, Andrzej Twardowski, Mateusz Tokarczyk, Grzegorz Kowalski, Bartłomiej Witkowski, Krzysztof Sawicki, Wojciech Pacuski, Michał Nawrocki, Jan Suffczyński, *Fe dopant in ZnO: 2+ versus 3+ valency and ion-carrier s,p–d exchange interaction*,
Physical Review B 94, 224414 (2015).
4. Krzysztof Gałkowski, Piotr Wojnar, Elżbieta Janik, Joanna Papierska, Krzysztof Sawicki, Piotr Kossacki, Jan Suffczyński,

Exciton dynamics in individual semimagnetic (Zn,Mn)Te/(Zn,Mg)Te nanowires,
Journal of Applied Physics, 118(9), 095704 (2015).

5. Krzysztof Sawicki, Filip K. Malinowski, Krzysztof Gałkowski, Tomasz Jakubczyk, Piotr Kossacki, Wojciech Pacuski, Jan Suffczyński,
Single-color, in situ photolithography marking of individual CdTe/ZnTe quantum dots containing a single Mn²⁺ ion,
Applied Physics Letters, 106, 012101 (2015).
6. Justyna Piwowar, Joanna Papierska, Krzysztof Sawicki, Jakub Kobak, Wojciech Pacuski, Andrzej Golnik, Piotr Kossacki, Jan Suffczyński,
Optical Properties of CdTe QDs in Proximity to a Surface, *Acta Physica Polonica A* 124 (5), 795-797, (2013).

PROWADZONE BADANIA ZOSTAŁY CZĘŚCIOWO WSPARTE PRZEZ PROJEKTY FINANSOWANE PRZEZ
NARODOWE CENTRUM NAUKI:

1. ETIUDA *Laserowanie z pojedynczych i sprzężonych podwójnych mikrownęk polarytonowych wykonanych z tellurków i selenków*
2019/32/T/ST3/00332 (kierownik projektu Krzysztof Sawicki)
2. PRELUDIUM *Badania spektroskopowe przepływu mikrownękowych polarytonów ekscytonowych w półprzewodnikach II-VI*
2017/25/N/ST3/00465 (kierownik projektu Krzysztof Sawicki)
3. SONATA BIS *Sprzężenie światło-materia w układzie z dwoma sprzężonymi mikrownękami optycznymi na bazie półprzewodników II-VI*
2013/10/E/ST3/00215 (kierownik projektu dr hab. Jan Suffczyński)

Bibliografia

- [1] T. H. Maiman, *Stimulated Optical Radiation in Ruby*, Nature **187**, 493 (1973).
- [2] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys, and R. O. Carlson, *Coherent Light Emission From GaAs Junctions*, Physical Review Letters **9**, 366 (1962).
- [3] J. P. van der Ziel, R. Dingle, R. C. Miller, W. Wiegmann, and W. A. Nordland, *Laser oscillation from quantum states in very thin GaAs-Al_{0.2}Ga_{0.8}As multilayer structures*, Applied Physics Letters **26**, 463 (1975).
- [4] H. Soda, K. Iga, C. Kitahara, and Y. Suematsu, *GaInAsP/InP Surface Emitting Injection Lasers*, Japanese Journal of Applied Physics **18**, 2329 (1979).
- [5] S. N. Bose, *Plancks Gesetz und Lichtquantenhypothese*, Zeitschrift für Physik **26**, 178 (1924).
- [6] A. Einstein, *Quantentheorie des einatomigen idealen Gases*, Sitzungsberichte der Königlich Preußischen Akademie der Wissenschaften zu Berlin (1924).
- [7] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, and C. E. A., *Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor*, Science **269**, 198 (1995).
- [8] J. M. Blatt, K. W. Böer, and W. Brandt, *Bose-Einstein Condensation of Excitons*, Physical Review **126**, 1691 (1962).
- [9] J. J. Hopfield, *Theory of the Contribution of Excitons to the Complex Dielectric Constant of Crystals*, Physical Review **112**, 1555 (1958).
- [10] V. M. Agranovich, *Dispersion of electromagnetic waves in crystals*, Journal of Experimental and Theoretical Physics **37**, 430 (1959).
- [11] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa, *Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity*, Physical Review Letters **69**, 3314 (1992).

- [12] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymańska, R. André, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, D. B., and L. S. Dang, *Bose-Einstein condensation of exciton polaritons*, Nature **443**, 409 (2006).
- [13] R. Balili, V. Hartwell, D. Snoke, L. Pfeiffer, and K. West, *Bose-Einstein Condensation of Microcavity Polaritons in a Trap*, Science **316**, 1007 (2007).
- [14] A. İmamoğlu, R. J. Ram, S. Pau, and Y. Yamamoto, *Nonequilibrium condensates and lasers without inversion: Exciton-polariton lasers*, Physical Review A **53**, 4250 (1996).
- [15] H. Deng, G. Weihs, D. Snoke, J. Bloch, and Y. Yamamoto, *Polariton lasing vs. photon lasing in a semiconductor microcavity*, Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America **100**, 15318 (2003).
- [16] D. Vogel, P. Krüger, and J. Pollmann, *Self-interaction and relaxation-corrected pseudopotentials for II-VI semiconductors*, Phys. Rev. B **54**, 5495 (1996).
- [17] E. T. Yu, M. C. Phillips, J. O. McCaldin, and T. C. McGill, *Measurement of the CdSe/ZnTe valence band offset by X-ray photoelectron spectroscopy*, Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena **9**, 2233 (1991).
- [18] J.-H. Yang, S. Chen, W.-J. Yin, X. G. Gong, A. Walsh, and S.-H. Wei, *Electronic structure and phase stability of MgTe, ZnTe, CdTe, and their alloys in the B3, B4, and B8 structures*, Physical Review B **79**, 245202 (2009).
- [19] D. Mourad, J.-P. Richters, L. Gérard, R. André, J. Bleuse, and H. Mariette, *Determination of valence-band offset at cubic CdSe/ZnTe type-II heterojunctions: A combined experimental and theoretical approach*, Phys. Rev. B **86**, 195308 (2012).
- [20] B. Laikhtman, *Are excitons really bosons?*, Journal of Physics: Condensed Matter **19**, 295214 (2007).
- [21] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla, and D. A. B. Miller, *Theory of transient excitonic optical nonlinearities in semiconductor quantum-well structures*, Physical Review B **32**, 6601 – (1985).
- [22] A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Malpuech, and F. P. Laussy, *Microcavities*, Series on Semiconductor Science and Technology, New York: Oxford University press (2007).
- [23] V. Savona, L. Andreani, P. Schwendimann, and A. Quattropani, *Quantum well excitons in semiconductor microcavities: Unified treatment of weak and strong coupling regimes*, Solid State Communications **93**, 733 (1995).

- [24] V. Savona, *Confined Photon Systems*, Ed. by H. Benisty et al. Lecture Notes in Physics. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg **531**, 173 (1999).
- [25] E. M. Purcell, H. C. Torrey, and R. V. Pound, *Resonance Absorption by Nuclear Magnetic Moments in a Solid*, Physical Review **69**, 674 (1946).
- [26] N. Ismail, C. C. Kores, D. Geskus, and M. Pollnau, *Fabry-Pérot resonator: spectral line shapes, generic and related Airy distributions, linewidths, finesses, and performance at low or frequency-dependent reflectivity*, Optics Express **24**, 16366 (2016).
- [27] A. Tredicucci, Y. Chen, V. Pellegrini, M. Börger, L. Sorba, F. Beltram, and F. Bassani, *Controlled Exciton-Photon Interaction in Semiconductor Bulk Microcavities*, Physical Review Letters **75**, 3906 (1995).
- [28] F. Tassone and Y. Yamamoto, *Exciton-exciton scattering dynamics in a semiconductor microcavity and stimulated scattering into polaritons*, Physical Review B **59**, 10830 (1999).
- [29] C. Ciuti, P. Schwendimann, B. Deveaud, and A. Quattropani, *Theory of the angle-resonant polariton amplifier*, Physical Review B **62**, R4825 (2000).
- [30] H. Deng, G. Weihs, C. Santori, J. Bloch, and Y. Yamamoto, *Condensation of Semiconductor Microcavity Exciton Polaritons*, Science **298**, 199 (2002).
- [31] R. Houdré, C. Weisbuch, R. P. Stanley, U. Oesterle, P. Pellandini, and M. Ilegems, *Measurement of Cavity-Polariton Dispersion Curve from Angle-Resolved Photoluminescence Experiments*, Physical Review Letters **73**, 2043 (1994).
- [32] R. P. Stanley, R. Houdré, C. Weisbuch, U. Oesterle, and M. Ilegems, *Cavity-polariton photoluminescence in semiconductor microcavities: Experimental evidence*, Physical Review B **53**, 10995 (1996).
- [33] B. Sermage, S. Long, I. Abram, J. Y. Marzin, J. Bloch, R. Planel, and V. Thierry-Mieg, *Time-resolved spontaneous emission of excitons in a microcavity: Behavior of the individual exciton-photon mixed states*, Physical Review B **53**, 16516 (1996).
- [34] J. Bloch and J. Y. Marzin, *Photoluminescence dynamics of cavity polaritons under resonant excitation in the picosecond range*, Physical Review B **56**, 2103 (1997).
- [35] D. Fröhlich, E. Mohler, and P. Wiesner, *Observation of Exciton Polariton Dispersion in CuCl*, Physical Review Letters **26**, 554 (1971).
- [36] U. Heim and P. Wiesner, *Direct Evidence for a Bottleneck of Exciton-Polariton Relaxation in CdS*, Physical Review Letters **30**, 1205 (1973).

- [37] V. Savona, Z. Hradil, A. Quattropani, and P. Schwendimann, *Quantum theory of quantum-well polaritons in semiconductor microcavities*, Physical Review B **49**, 8774 (1994).
- [38] D. N. Krizhanovskii, A. P. D. Love, D. Sanvitto, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick, and J. S. Roberts, *Interaction between a high-density polariton phase and the exciton environment in semiconductor microcavities*, Physical Review B **75**, 233307 (2007).
- [39] P. G. Savvidis, J. J. Baumberg, R. M. Stevenson, M. S. Skolnick, D. M. Whittaker, and J. S. Roberts, *Angle-Resonant Stimulated Polariton Amplifier*, Physical Review Letters **84**, 1547 (2000).
- [40] D. Bajoni, *Polariton lasers. Hybrid light–matter lasers without inversion*, Journal of Physics D: Applied Physics **45**, 313001 (2012).
- [41] L. S. Dang, D. Heger, R. André, F. Bœuf, and R. Romestain, *Stimulation of polariton photoluminescence in semiconductor microcavity*, Physical Review Letters **81**, 3920 (1998).
- [42] K. Sawicki, J.-G. Rousset, R. Rudniewski, W. Pacuski, M. Ściesiek, T. Kazimierczuk, K. Sobczak, J. Borysiuk, M. Nawrocki, and J. Suffczyński, *Triple threshold lasing from a photonic trap in a Te/Se-based optical microcavity*, Communication Physics **2**, 38 (2019).
- [43] K. Sawicki, M. Jurczak, W. Pacuski, and J. Suffczyński, *Direct Interbranch Relaxation of Polaritons in a Microcavity with Embedded CdSe/(Cd,Mg)Se Quantum Wells*, Journal of Electronic Materials **49**, 4531 (2020).
- [44] A. Amo, J. Lefrère, S. Pigeon, C. Adrados, C. Ciuti, I. Carusotto, R. Houdré, E. Giacobino, and A. Bramati, *Superfluidity of polaritons in semiconductor microcavities*, Nature Physics **5**, 805 (2009).
- [45] K. G. Lagoudakis, B. Piętka, M. Wouters, R. André, and B. Deveaud-Plédran, *Coherent Oscillations in an Exciton-Polariton Josephson Junction*, Physical Review Letters **105**, 120403 (2010).
- [46] M. Abbarchi, A. Amo, V. G. Sala, D. D. Solnyshkov, H. Flayac, L. Ferrier, I. Sagnes, E. Galopin, A. Lemaître, G. Malpuech, and J. Bloch, *Macroscopic quantum self-trapping and Josephson oscillations of exciton polaritons*, Nature Physics **9**, 275 (2013).
- [47] C. Leyder, M. Romanelli, J. P. Karr, E. Giacobino, T. C. Liew, M. M. Glazov, A. V. Kavokin, G. Malpuech, and A. Bramati, *Observation of the optical spin Hall effect*, Nature Physics **3**, 628 (2007).

- [48] K. Lekenta, M. Król, R. Mirek, K. Łempicka, D. Stephan, R. Mazur, P. Morawiak, P. Kula, W. Piecek, P. G. Lagoudakis, B. Piętka, and J. Szczytko, *Tunable optical spin Hall effect in a liquid crystal microcavity*, *Light Science & Applications* **7**, 74 (2018).
- [49] N. Lundt, Ł. Dusanowski, E. Sedov, P. Stepanov, M. M. Glazov, S. Klemmt, M. Klaas, J. Beierlein, Y. Qin, S. Tongay, M. Richard, A. V. Kavokin, S. Höffling, and C. Schneider, *Optical valley Hall effect for highly valley-coherent exciton-polaritons in an atomically thin semiconductor*, *Nature Nanotechnology* **14**, 770 (2019).
- [50] L. Pitaevskii and S. Strindgari, *Bose–Einstein Condensation*, Clarendon (2003).
- [51] M. Wouters and I. Carusotto, *Excitations in a Nonequilibrium Bose-Einstein Condensate of Exciton Polaritons*, *Physical Review Letters* **99**, 140402 (2007).
- [52] I. Carusotto and C. Ciuti, *Quantum fluids of light*, *Reviews of Modern Physics* **85**, 299 (2013).
- [53] M. Wouters, I. Carusotto, and C. Ciuti, *Spatial and spectral shape of inhomogeneous nonequilibrium exciton-polariton condensates*, *Physical Review B* **77**, 115340 (2008).
- [54] E. Hanamura and H. Haug, *Condensation effects of excitons*, *Physics Reports* **33**, 209 (1977).
- [55] P. Mushonga, M. O. Onani, A. M. Madiehe, and M. Meyer, *Indium Phosphide-Based Semiconductor Nanocrystals and Their Applications*, *Journal of Nanomaterials* **414**, 1 (2012).
- [56] D. Sanvitto, A. Amo, L. Viña, R. André, D. Solnyshkov, and G. Malpuech, *Exciton-polariton condensation in a natural two-dimensional trap*, *Physical Review B* **80**, 045301 (2009).
- [57] F. Manni, K. G. Lagoudakis, R. André, M. Wouters, and B. Deveaud, *Penrose-Onsager Criterion Validation in a One-Dimensional Polariton Condensate*, *Physical Review Letters* **109**, 150409 (2012).
- [58] K. G. Lagoudakis, F. Manni, B. Piętka, M. Wouters, T. C. H. Liew, V. Savona, A. V. Kavokin, R. André, and B. Deveaud-Plédran, *Probing the Dynamics of Spontaneous Quantum Vortices in Polariton Superfluids*, *Physical Review Letters* **106**, 115301 (2011).
- [59] C. Kruse, G. Alexe, M. Klude, H. Heinke, and D. Hommel, *High Reflectivity p-Type Doped Distributed Bragg Reflectors Using ZnSe/MgS Superlattices*, *physica status solidi (b)* **229**, 111 (2002).
- [60] W. Pacuski, C. Kruse, S. Figge, and D. Hommel, *High-reflectivity broadband distributed Bragg reflector lattice matched to ZnTe*, *Applied Physics Letters* **94**, 191108 (2009).

- [61] J. Sadowski, H. Mariette, A. Wasiela, R. André, Y. Merle d'Aubigné, and T. Dietl, *Magnetic tuning in excitonic Bragg structures of (Cd,Mn)Te/(Cd,Zn,Mg)Te*, Physical Review B **56**, R1664 (1997).
- [62] K. E. Polczyńska, K. Sobczak, and W. Pacuski, *Distributed Bragg reflector made of CdSe and ZnTe*, Superlattices and Microstructures **139**, 106422 (2020).
- [63] R. Rudniewski, J.-G. Rousset, E. Janik, P. Kossacki, A. Golnik, M. Nawrocki, and W. Pacuski, *Type I CdSe and CdMgSe Quantum Wells*, Acta Physica Polonica A **126**, 1167 (2014).
- [64] M. Saba, C. Ciuti, J. Bloch, V. Thierry-Mieg, R. André, L. S. Dang, S. Kundermann, A. Mura, G. Bongiovanni, J. L. Staehli, and B. Deveaud, *High-temperature ultrafast polariton parametric amplification in semiconductor microcavities*, Nature **414**, 731 (2001).
- [65] M. Ściesiek, W. Pacuski, J.-G. Rousset, M. Parlińska-Wojtan, A. Golnik, and J. Suffczyński, *Design and control of mode interaction in coupled ZnTe optical microcavities*, Crystal Growth & Design **17**, 3716 (2017).
- [66] W. Pacuski, J.-G. Rousset, V. Delmonte, T. Jakubczyk, K. Sobczak, J. Borysiuk, K. Sawicki, E. Janik, and J. Kasprzak, *Antireflective Photonic Structure for Coherent Nonlinear Spectroscopy of Single Magnetic Quantum Dots*, Crystal Growth & Design **17**, 2987 (2017).
- [67] B. Seredyński, M. Król, P. Starzyk, R. Mirek, M. Ściesiek, K. Sobczak, J. Borysiuk, D. Stephan, J.-G. Rousset, J. Szczytko, B. Piętka, and W. Pacuski, *(Cd,Zn,Mg)Te-based microcavity on MgTe sacrificial buffer: Growth, lift-off, and transmission studies of polaritons*, Physical Review Materials **2**, 043406 (2018).
- [68] M. Ściesiek, K. Sawicki, W. Pacuski, K. Sobczak, T. Kazimierzczuk, A. Golnik, and J. Suffczyński, *Long-Distance Coupling and Energy Transfer between Exciton States in Magnetically Controlled Microcavities*, Communications Materials (2020).
- [69] L. S. Dang, D. Heger, R. André, F. Bœuf, and R. Romestain, *Stimulation of polariton photoluminescence in semiconductor microcavity*, Physical Review Letters **81**, 3920 (1998).
- [70] T. Klein, S. Klemmt, E. Durupt, C. Kruse, D. Hommel, and M. Richard, *Polariton lasing in high-quality selenide-based micropillars in the strong coupling regime*, Applied Physical Letters **107**, 071101 (2015).
- [71] J.-G. Rousset, B. Piętka, M. Król, R. Mirek, K. Lekenta, J. Szczytko, J. Borysiuk, J. Suffczyński, T. Kazimierzczuk, M. Goryca, T. Smoleński, P. Kossacki, M. Nawrocki, and W. Pacuski, *Strong coupling and polariton lasing in Te based microcavities embedding (Cd, Zn)Te quantum wells*, Applied Physical Letters **107**, 201109 (2015).

- [72] R. Spiegel, G. Bacher, A. Forchel, B. Jobst, D. Hommel, and G. Landwehr, *Polarization-dependent formation of biexcitons in (Zn,Cd)Se/ZnSe quantum wells*, Physical Review B **55**, 9866 (1997).
- [73] S. Gambino, M. Mazzeo, A. Genco, O. Di Stefano, S. Savasta, S. Patané, D. Ballarini, F. Mangione, G. Lerario, D. Sanvitto, and G. Gigli, *Exploring Light–Matter Interaction Phenomena under Ultrastrong Coupling Regime*, ACS Photonics **1**, 1042 (2014).
- [74] X. Liu, T. Galfsky, Z. Sun, F. Xia, E. Lin, Y.-H. Lee, S. Kéna-Cohen, and V. M. Menon, *Strong light–matter coupling in two-dimensional atomic crystals*, Nature Photonics **9**, 30 (2015).
- [75] S. Kéna-Cohen, M. Davanço, and S. R. Forrest, *Strong Exciton-Photon Coupling in an Organic Single Crystal Microcavity*, Physical Review Letters **101**, 116401 (2008).
- [76] K. S. Daskalakis, S. A. Maier, R. Murray, and S. Kéna-Cohen, *Nonlinear interactions in an organicpolariton condensate*, Nature Materials **13**, 271 – (2014).
- [77] A. Delteil, A. Vasanelli, P. Jouy, D. Barate, J. C. Moreno, R. Teissier, A. N. Baranov, and C. Sirtori, *Optical phonon scattering of cavity polaritons in an electroluminescent device*, Physical Review B **83**, 081404 (2011).
- [78] R. Colombelli and J.-M. Manceau, *Perspectives for Intersubband Polariton Lasers*, Physical Review X **5**, 011031 (2015).
- [79] J.-M. Manceau, N.-L. Tran, G. Biasiol, T. Laurent, I. Sagnes, G. Beaudoin, S. De Liberato, I. Carusotto, and R. Colombelli, *Resonant intersubband polariton-LO phonon scattering in an optically pumped polaritonic device*, Applied Physics Letters **112**, 191106 (2018).
- [80] A. M. Glass, K. Tai, R. B. Bylsma, R. D. Feldman, D. H. Olson, and R. F. Austin, *Room-temperature optically pumped Cd_{0.25}Zn_{0.75}Te/ZnTe quantum well lasers grown on GaAs substrates*, Applied Physics Letters **53**, 834 (1988).
- [81] H. Jeon, J. Ding, A. V. Nurmikko, H. Luo, N. Samarth, J. K. Furdyna, W. A. Bonner, and R. E. Nahory, *Room-temperature blue lasing action in (Zn,Cd)Se/ZnSe optically pumped multiple quantum well structures on lattice-matched (Ga,In)As substrates*, Applied Physics Letters **57**, 2413 (1990).
- [82] J. Ding, H. Jeon, A. V. Nurmikko, V. Luo, N. Samarth, and J. K. Furdyna, *Laser action in the blue-green from optically pumped (Zn,Cd)Se/ZnSe single quantum well structures*, Applied Physics Letters **57**, 2756 (1990).

- [83] C. Kruse, S. M. Ulrich, G. Alexe, E. Roventa, R. Kröger, B. Brendemühl, P. Michler, J. Gutowski, and D. Hommel, *Green monolithic II-VI vertical-cavity surface-emitting laser operating at room temperature*, Physica Status Solidi B **241**, 731 (2004).
- [84] S. Christopoulos, G. B. H. von Högersthal, A. J. D. Grundy, P. G. Lagoudakis, A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Christmann, R. Butté, E. Feltn, J.-F. Carlin, and N. Grandjean, *Room-Temperature Polariton Lasing in Semiconductor Microcavities*, Physical Review Letters **98**, 126405 (2007).
- [85] D. Bajoni, P. Senellart, E. Wertz, I. Sagnes, A. Miard, A. Lemaître, and J. Bloch, *Polariton Laser Using Single Micropillar GaAs–GaAlAs Semiconductor Cavities*, Physical Review Letters **100**, 047401 (2008).
- [86] B. Nelsen, R. Balili, D. W. Snoke, L. Pfeiffer, and K. West, *Lasing and polariton condensation: Two distinct transitions in GaAs microcavities with stress traps*, Journal of Applied Physics **105**, 122414 (2009).
- [87] E. Kammann, H. Ohadi, M. Maragkou, A. V. Kavokin, and P. G. Lagoudakis, *Crossover from photon to exciton-polariton lasing*, New Journal of Physics **14**, 105003 (2012).
- [88] P. Tsotsis, P. S. Eldridge, T. Gao, S. I. Tsintzos, Z. Hatzopoulos, and P. G. Savvidis, *Lasing threshold doubling at the crossover from strong to weak coupling regime in GaAs microcavity*, New Journal of Physics **14**, 023060 (2012).
- [89] J.-S. Tempel, F. Veit, M. Aßmann, L. E. Kreilkamp, A. Rahimi-Iman, A. Löffler, S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech, A. Forchel, and M. Bayer, *Characterization of two-threshold behavior of the emission from a GaAs microcavity*, Physical Review B **85**, 075318 (2012).
- [90] B. Zhang, Z. Wang, S. Brodbeck, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, and H. Deng, *Zero-dimensional polariton laser in a subwavelength grating-based vertical microcavity*, Light: Science & Applications **3**, e135 (2014).
- [91] F.-k. Hsu, W. Xie, Y.-S. Lee, S.-D. Lin, and C.-W. Lai, *Ultrafast spin-polarized lasing in a highly photoexcited semiconductor microcavity at room temperature*, Physical Review B **91**, 195312 (2015).
- [92] Y.-Y. Lai, Y.-H. Chou, Y.-P. Lan, T.-C. Lu, S.-C. Wang, and Y. Yamamoto, *Crossover from polariton lasing to exciton lasing in a strongly coupled ZnO microcavity*, Scientific Reports **6**, 20581 (2016).

- [93] V. G. Sala, F. Marsault, M. Wouters, E. Galopin, I. Sagnes, A. Lemaître, J. Bloch, and A. Amo, *Stochastic precession of the polarization in a polariton laser*, Physical Review B **93**, 115313 (2016).
- [94] R. Niyuki, H. Fujiwara, T. Nakamura, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji, and K. Sasaki, *Double threshold behavior in a resonance-controlled ZnO random laser*, APL Photonics **2**, 036101 (2017).
- [95] M. Karl, B. Kettner, S. Burger, F. Schmidt, H. Kalt, and M. Hetterich, *Dependencies of micro-pillar cavity quality factors calculated with finite element methods*, Opt. Express **17**, 1144 (2009).
- [96] S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauß, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp, and A. Forchel, *AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000*, Applied Physical Letters **90**, 251109 (2007).
- [97] C. Klingshirn and H. Haug, *Optical properties of highly excited direct gap semiconductors*, Physics Reports **70**, 315 (1981).
- [98] I. I. Reshina, S. V. Ivanov, D. N. Mirlin, I. V. Sedova, and S. V. Sorokin, *Direct and indirect excitons and magnetic polarons in CdSe/CdMgSe/CdMnSe semimagnetic double quantum wells*, Physical Review B **74**, 235324 (2006).
- [99] R. Cingolani, P. Prete, D. Greco, P. V. Giugno, M. Lomascolo, R. Rinaldi, L. Calcagnile, L. Vanzetti, L. Sorba, and A. Franciosi, *Exciton spectroscopy in $\text{Zn}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$ quantum wells*, Physical Review B **51**, 5176 (1995).
- [100] W. Shan, J. J. Song, H. Luo, and J. K. Furdyna, *Determination of the fundamental and split-off band gaps in zinc-blende CdSe by photomodulation spectroscopy*, Physical Review B **50**, 8012 (1994).
- [101] R. G. Wheeler and J. O. Dimmock, *Exciton Structure and Zeeman Effects in Cadmium Selenide*, Physical Review **125**, 1805 (1962).
- [102] L. Kappei, J. Szczytko, F. Morier-Genoud, and B. Deveaud, *Direct Observation of the Mott Transition in an Optically Excited Semiconductor Quantum Well*, Physical Review Letters **94**, 147403 (2005).
- [103] P. G. Lagoudakis, M. D. Martin, J. J. Baumberg, A. Qarry, E. Cohen, and L. N. Pfeiffer, *Electron-polariton scattering in semiconductors microcavities*, Physical Review Letters **90**, 206401 (2013).

- [104] A. Amo, M. D. Martín, L. Viña, A. I. Toropov, and K. S. Zhuravlev, *Interplay of exciton and electron-hole plasma recombination on the photoluminescence dynamics in bulk GaAs*, Physical Review B **73**, 035205 (2006).
- [105] J. Takeda, S. Kurita, Y. Chen, and T. Yao, *Ultrafast carrier dynamics in ZnO epitaxial thin films studied by optical Kerr gate luminescence spectroscopy*, International Journal of Modern Physics B **15**, 3669 (2001).
- [106] J. Manning, R. Olshansky, and S. Chin, *The carrier-induced index change in AlGaAs and 1.3 μm InGaAsP diode lasers*, IEEE Journal of Quantum Electronics **19**, 1525 (1985).
- [107] J. Bloch, F. Bœuf, J. M. Gérard, B. Legrand, J. Y. Marzin, R. Planel, V. Thierry-Mieg, and E. Costard, *Strong and weak coupling regime in pillar semiconductor microcavities*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **2**, 915 (1998).
- [108] G. Roumpos, W. H. Nitsche, S. Höfling, A. Forchel, and Y. Yamamoto, *Gain-Induced Trapping of Microcavity Exciton Polariton Condensates*, Physical Review Letters **104**, 126403 (2010).
- [109] A. Askitopoulos, H. Ohadi, A. V. Kavokin, Z. Hatzopoulos, P. G. Savvidis, and P. G. Lagoudakis, *Polariton condensation in an optically induced two-dimensional potential*, Physical Review B **88**, 041308(R) (2013).
- [110] S. Kim, Z. Wang, S. Brodbeck, C. Schneider, S. Höfling, and H. Deng, *Monolithic High-Contrast Grating Based Polariton Laser*, ACS Photonics **6**, 18 (2019).
- [111] O. El Daïf, A. Baas, T. Guillet, J.-P. Brantut, R. Idrissi Kaitouni, J. L. Staehli, F. Morier-Genoud, and B. Deveaud, *Polariton quantum boxes in semiconductor microcavities*, Applied Physics Letters **88**, 061105 (2006).
- [112] G. Nardin, Y. Léger, B. Piętka, F. Morier-Genoud, and B. Deveaud-Plédran, *Phase-resolved imaging of confined exciton-polariton wave functions in elliptical traps*, Physical Review B **82**, 045304 (2010).
- [113] J. M. Zajac, W. Langbein, M. Hugues, and M. Hopkinson, *Polariton states bound to defects in GaAs/AlAs planar microcavities*, Physical Review B **85**, 165309 (2012).
- [114] J. M. Zajac and W. Langbein, *Structure and zero-dimensional polariton spectrum of natural defects in GaAs/AlAs microcavities*, Physical Review B **86**, 195401 (2012).
- [115] F. Ding, T. Stöferle, L. Mai, A. Knoll, and R. F. Mahrt, *Vertical microcavities with high Q and strong lateral mode confinement*, Physical Review B **87**, 161116 (2013).

- [116] M. Thunert, A. Janot, H. Franke, C. Sturm, T. Michalsky, M. D. Martín, L. Viña, B. Rosenow, M. Grundmann, and R. Schmidt-Grund, *Cavity polariton condensate in a disordered environment*, Physical Review B **93**, 064203 (2016).
- [117] K. Sebald, M. Seyfried, S. Klemmt, and C. Kruse, *Optical properties of photonic molecules and elliptical pillars made of ZnSe-based microcavities*, Optics Express **19**, 19422 (2011).
- [118] A. Dousse, J. Suffczynski, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaître, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin, and P. Senellart, *Ultrabright source of entangled photon pairs*, Nature **466**, 217 (2010).
- [119] J. Suffczynski, T. Kazimierczuk, M. Goryca, B. Piechal, A. Trajnerowicz, K. Kowalik, P. Kossacki, A. Golnik, K. P. Korona, M. Nawrocki, J. A. Gaj, and G. Karczewski, *Excitation mechanisms of individual CdTe/ZnTe quantum dots studied by photon correlation spectroscopy*, Physical Review B **74**, 085319 (2006).
- [120] T. Byrnes, N. Y. Kim, and Y. Yamamoto, *Exciton-polariton condensates*, Nature Physics **10**, 803 (2014).
- [121] M. Galbiati, L. Ferrier, D. D. Solnyshkov, D. Tanese, E. Wertz, A. Amo, M. Abbarchi, P. Senellart, I. Sagnes, A. Lemaître, E. Galopin, G. Malpuech, and J. Bloch, *Polariton Condensation in Photonic Molecules*, Physical Review Letters **108**, 126403 (2012).
- [122] G. Grosso, S. Trebaol, M. Wouters, F. Morier-Genoud, M. T. Portella-Oberli, and B. Deveaud, *Nonlinear relaxation and selective polychromatic lasing of confined polaritons*, Physical Review B **90**, 045307 (2014).
- [123] S. R. K. Rodriguez, A. Amo, I. Sagnes, L. Le Gratiet, E. Galopin, A. Lemaître, and J. Bloch, *Interaction-induced hopping phase in driven-dissipative coupled photonic microcavities*, Nature Communications **7**, 1 (2016).
- [124] S. Rahimzadeh Kalaleh Rodriguez, A. Amo, I. Carusotto, I. Sagnes, L. Le Gratiet, E. Galopin, A. Lemaître, and J. Bloch, *Nonlinear Polariton Localization in Strongly Coupled Driven-Dissipative Microcavities*, ACS Photonics **5**, 95 (2018).
- [125] R. Su, S. Ghosh, J. Wang, S. Liu, C. Diederichs, T. C. H. Liew, and Q. Xiong, *Observation of exciton polariton condensation in a perovskite lattice at room temperature*, Nature Physics **16**, 301 (2020).
- [126] N. Carlon Zambon, S. R. K. Rodriguez, A. Lemaître, A. Harouri, L. Le Gratiet, I. Sagnes, P. St-Jean, S. Ravets, A. Amo, and J. Bloch, *Parametric instability in coupled nonlinear microcavities*, Physical Review A **102**, 023526 (2020).

- [127] C. Diederichs, J. Tignon, G. Dasbach, C. Ciuti, A. Lemaître, J. Bloch, P. Roussignol, and C. Delalande, *Parametric oscillation in vertical triple microcavities*, *Nature* **440**, 904 (2006).
- [128] R. P. Stanley, R. Houdré, U. Oesterle, M. Illegems, and C. Weisbuch, *Coupled semiconductor microcavities*, *Applied Physical Letters* **65**, 2093 (1994).
- [129] W. Xie, H. Dong, S. Zhang, L. Sun, W. Zhou, Y. Ling, J. Lu, X. Shen, and Z. Chen, *Room-Temperature Polariton Parametric Scattering Driven by a One-Dimensional Polariton Condensate*, *Physical Review Letters* **108**, 166401 (2012).
- [130] A. Trichet, F. Médard, J. Zúñiga-Pérez, B. Alloing, and M. Richard, *From strong to weak coupling regime in a single GaN microwire up to room temperature*, *New Journal of Physics* **14**, 073004 (2012).
- [131] D. Xu, W. Xie, W. Liu, J. Wang, L. Zhang, Y. Wang, S. Zhang, L. Sun, X. Shen, and Z. Chen, *Polariton lasing in a ZnO microwire above 450 K*, *Applied Physical Letters* **104**, 082101 (2014).
- [132] Y. Zhang, X. Zhang, B. Tang, C. Tian, C. Xu, H. Dong, and W. Zhou, *Realization of an all-optically controlled dynamic superlattice for exciton–polaritons*, *Nanoscale* **10**, 14082 (2018).
- [133] A. Armitage, M. S. Skolnick, V. N. Astratov, D. M. Whittaker, G. Panzarini, L. C. Andreani, T. A. Fisher, J. S. Roberts, A. V. Kavokin, M. A. Kaliteevski, and M. R. Vladimirova, *Optically induced splitting of bright excitonic states in coupled quantum microcavities*, *Physical Review B* **57**, 14877 (1998).
- [134] S. Stelitano, G. De Luca, S. Savasta, L. Monsù Scolaro, and S. Patané, *Vertical coupled double organic microcavities*, *Applied Physical Letters* **95**, 093303 (2009).
- [135] B. Liu, P. Rai, J. Grezma, R. J. Twieg, and K. D. Singer, *Coupling of exciton-polaritons in low-Q coupled microcavities beyond the rotating wave approximation*, *Physical Review B* **92**, 155301 (2015).
- [136] R. Jayaprakash, K. Georgiou, H. Coulthard, A. Askitopoulos, S. K. Rajendran, D. M. Coles, A. J. Musser, J. Clark, I. D. Samuel, G. A. Turnbull, et al., *A hybrid organic–inorganic polariton LED*, *Light Science & Applications* **8**, 1 (2019).
- [137] T. Lecomte, D. Taj, A. Lemaître, J. Bloch, C. Delalande, J. Tignon, and P. Roussignol, *Polariton-polariton interaction potentials determination by pump-probe degenerate scattering in a multiple microcavity*, *Physical Review B* **89**, 155308 (2014).

- [138] V. Ardizzone, P. Lewandowski, M. H. Luk, Y. C. Tse, N. H. Kwong, A. Lücke, M. Abbarchi, E. Baudin, E. Galopin, J. Bloch, A. Lemaître, P. T. Leung, P. Roussignol, R. Binder, J. Tignon, and S. Schumacher, *Formation and control of Turing patterns in a coherent quantum fluid*, Scientific Reports **3**, 3016 (2013).
- [139] S. M. H. Luk, H. Vergnet, O. Lafont, P. Lewandowski, N. H. Kwong, E. Galopin, A. Lemaître, P. Roussignol, J. Tignon, S. Schumacher, R. Binder, and E. Baudin, *All-Optical Beam Steering Using the Polariton Lighthouse Effect*, ACS Photonics **8**, 449 (2021).
- [140] H. Flayac and V. Savona, *Single photons from dissipation in coupled cavities*, Physical Review A **94**, 013815 (2016).
- [141] S. Portolan, L. Einkemmer, Z. Vörös, G. Weihs, and P. Rabl, *Generation of hyper-entangled photon pairs in coupled microcavities*, New Journal of Physics **16**, 063030 (2014).
- [142] T. Jacqmin, I. Carusotto, I. Sagnes, M. Abbarchi, D. D. Solnyshkov, G. Malpuech, E. Galopin, A. Lemaître, J. Bloch, and A. Amo, *Direct Observation of Dirac Cones and a Flatband in a Honeycomb Lattice for Polaritons*, Physical Review Letters **112**, 116402 (2014).
- [143] Y. Ota, K. Takata, T. Ozawa, A. Amo, Z. Jia, B. Kante, M. Notomi, Y. Arakawa, and S. Iwamoto, *Active topological photonics*, Nanophotonics **9**, 547 (2020).
- [144] P. Kokhanchik, H. Sigurdsson, B. Piętko, J. Szczytko, and P. G. Lagoudakis, *Photonic Berry curvature in double liquid crystal microcavities with broken inversion symmetry*, Physical Review B **103**, L081406 (2021).
- [145] T. Gao, P. S. Eldridge, T. C. H. Liew, S. I. Tsintzos, G. Stavrinidis, G. Deligeorgis, Z. Hatzopoulos, and P. G. Savvidis, *Polariton condensate transistor switch*, Physical Review B **85**, 235102 (2012).
- [146] V. Ardizzone, L. D. Marco, M. D. Giorgi, L. Dominici, D. Ballarini, and D. Sanvitto, *Emerging 2D materials for room-temperature polaritonics*, Nanophotonics **8**, 1547 (2019).
- [147] M. J. Hartmann, F. G. Brandao, and M. B. Plenio, *Strongly interacting polaritons in coupled arrays of cavities*, Nature Physics **2**, 849 (2006).
- [148] L. Chang, X. Jiang, S. Hua, C. Yang, J. Wen, L. Jiang, G. Li, G. Wang, and M. Xiao, *Parity-time symmetry and variable optical isolation in active-passive-coupled microresonators*, Nature Photonics **8**, 524 (2014).
- [149] P. Hamel, S. Haddadi, F. Raineri, P. Monnier, G. Beaudoin, I. Sagnes, A. Levenson, and A. M. Yacomotti, *Spontaneous mirror-symmetry breaking in coupled photonic-crystal nanolasers*, Nature Photonics **9**, 311 (2015).

- [150] D. Gerace and V. Savona, *Unconventional photon blockade in doubly resonant microcavities with second-order nonlinearity*, Physical Review A **89**, 031803 (2014).
- [151] G. Dasbach, M. Schwab, M. Bayer, D. Krizhanovskii, and A. Forchel, *Tailoring the polariton dispersion by optical confinement: Access to a manifold of elastic polariton pair scattering channels*, Physical Review B **66**, 201201 (2002).
- [152] C. Ciuti, *Branch-entangled polariton pairs in planar microcavities and photonic wires*, Physical Review B **69**, 245304 (2004).
- [153] P. St-Jean, V. Goblot, E. Galopin, A. Lemaître, T. Ozawa, L. Le Gratiet, I. Sagnes, J. Bloch, and A. Amo, *Lasing in topological edge states of a one-dimensional lattice*, Nature Photonics **11**, 651 (2017).
- [154] L. Liao, Y. Ling, S. Luo, Z. Zhang, J. Wang, and Z. Chen, *Propagation of a polariton condensate in a one-dimensional microwire at room temperature*, Applied Physical Express **12**, 052009 (2019).
- [155] K. Winkler, O. Egorov, I. G. Savenko, X. Ma, E. Estrecho, T. Gao, S. Muller, M. Kamp, T. C. H. Liew, E. Ostrovskaya, S. Hofling, and C. Schneider, *Collective state transitions of exciton-polaritons loaded into a periodic potential*, Physical Review B **93**, 121303 (2016).
- [156] A. Opala, M. Pieczarka, and M. Matuszewski, *Theory of relaxation oscillations in exciton-polariton condensates*, Physical Review B **98**, 195312 (2018).
- [157] M. Ściesiek, K. Sawicki, W. Pacuski, K. Sobczak, T. Kazimierczuk, G. Golnik, and J. Suffczyński, *Long-distance coupling and energy transfer between exciton states in magnetically controlled microcavities*, Communications Materials **1**, 78 (2020).
- [158] F. Veit, M. Aßmann, M. Bayer, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp, and A. Forchel, *Spatial dynamics of stepwise homogeneously pumped polariton condensates*, Physical Review B **86**, 195313 (2012).
- [159] C. Antón, T. C. H. Liew, G. Tosi, M. D. Martín, T. Gao, Z. Hatzopoulos, P. S. Eldridge, P. G. Savvidis, and L. Viña, *Energy relaxation of exciton-polariton condensates in quasi-one-dimensional microcavities*, Physical Review B **88**, 035313 (2013).
- [160] V. Ardizzone, M. Abbarchi, A. Lemaître, I. Sagnes, P. Senellart, J. Bloch, C. Delalande, J. Tignon, and P. Roussignol, *Bunching visibility of optical parametric emission in a semiconductor microcavity*, Physical Review B **86**, 041301 (2012).

THIS THESIS WAS TYPESET using $\LaTeX$, originally developed by Leslie Lamport and based on Donald Knuth's $\TeX$. The body text is set in 11 point Arno Pro, designed by Robert Slimbach in the style of book types from the Aldine Press in Venice, and issued by Adobe in 2007. A template, which can be used to format a PhD thesis with this look and feel, has been released under the permissive MIT (x11) license, and can be found online at github.com/suchow/ or from the author at suchow@post.harvard.edu.