

# О методе диагностики полупроводников при двухфотонном возбуждении биэкситонов

П.И.Хаджи, Л.Ю.Надькин

*Представлена версия однофотонного тестирования оптических свойств полупроводника в условиях, когда благодаря двухфотонному поглощению мощный импульс накачки возбуждает биэкситоны из основного состояния кристалла. Предсказана возможность существования лоренцоподобного пика поглощения и найден квазиполяритонный закон дисперсии в области, где отсутствует реальный энергетический уровень. Изучена временная эволюция полосы поглощения под действием ультракоротких импульсов.*

**Ключевые слова:** двухфотонное возбуждение, биэкситоны, полупроводники.

## 1. Введение

При экспериментальном исследовании оптических свойств полупроводников в экситонной области спектра при больших уровнях возбуждения особое значение приобрел метод возбуждения – зондирования (pump-probe). Он основан на использовании двух пучков лазерного излучения – мощного пучка накачки и слабого зондирующего пучка. Слабый пучок отслеживает изменения оптических свойств кристалла, обусловленные действием мощного пучка накачки. С использованием этого метода изучались кинетика рекомбинации и нелинейный отклик системы экситонов и биэкситонов [1–3], красный и голубой сдвиги экситонной полосы излучения в условиях пикосекундной накачки [4–6], эффект Ауслера – Таунса на биэкситонах [7]. В теоретических работах [8–14] рассматривались различные аспекты реализации метода pump-probe для системы экситонов и биэкситонов большой плотности. В [8, 9] изучены диэлектрические восприимчивости кристалла CuCl для случая, когда мощный импульс накачки действует в области M-полосы, а зондирование осуществляется путем двухфотонного поглощения света с образованием биэкситонов. В [13] показано, что поведение восприимчивостей полупроводника в экситонной области спектра при учете упругого экситон-экситонного взаимодействия может быть бистабильным в зависимости от частоты и интенсивности накачки.

В настоящей работе предлагается новая версия метода pump-probe с использованием процесса двухфотонного поглощения света в качестве основного механизма нелинейности в применении к кристаллу типа CuCl. Как известно [14, 15], энергия связи биэкситона в кристалле CuCl составляет порядка 30–40 мэВ. Биэкситоны хо-

рошо идентифицируются в спектрах их прямого двухфотонного возбуждения из основного состояния кристалла.

## 2. Постановка задачи, основные уравнения и обсуждение результатов

Пусть мощный импульс накачки с амплитудой  $E_0$  и частотой  $\omega_p$  возбуждает биэкситоны благодаря двухфотонному поглощению (рис.1). Слабый зондирующий импульс с амплитудой поля  $E$  и частотой  $\omega$  действует в той же области спектра, однако двухфотонное поглощение этого импульса является исчезающе малым. Поэтому мы рассмотрим процесс двухфотонного поглощения в случае, когда генерация биэкситонов осуществляется одним фотоном мощного импульса вместе с фотоном слабого импульса, следовательно, при этом происходит однофотонное зондирование фотонами слабого импульса (рис.1). Чисто однофотонное поглощение слабого импульса без участия мощного на частоте, примерно равной половине собственной частоты биэкситона, невозможно [14]. Однако опосредованное однофотонное поглощение этого импульса оказывается возможным благодаря существованию мощного импульса накачки, фотоны которого имеют примерно ту же частоту, что и фотоны слабого. При действии мощного импульса накачки возникает квазиэнергетическое состояние с частотой

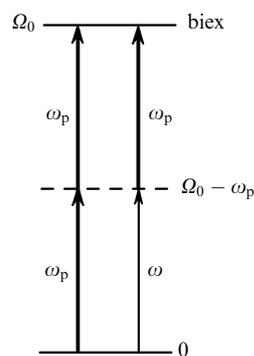


Рис.1. Схема квантовых переходов при двухфотонном возбуждении биэкситонного состояния мощным импульсом  $\omega_p$  и его однофотонном зондировании слабым импульсом  $\omega$ .

**П.И.Хаджи.** Институт прикладной физики АН РМ, Молдавия, МД 2800 Кишинев, ул. Академией, 5; Приднестровский государственный университет им. Т.Г.Шевченко, Молдавия, МД 3300 Тирасполь; e-mail: tdsu4@idknet.com

**Л.Ю.Надькин.** Приднестровский государственный университет им. Т.Г.Шевченко, Молдавия, МД 3300 Тирасполь

Поступила в редакцию 27 октября 2005 г., после доработки – 10 марта 2006 г.

той, равной разности собственной частоты биэкситона и частоты фотона мощного импульса,  $\Omega_0 - \omega_p$ , на которой и идет поглощение фотонов слабого импульса. Таким образом, можно утверждать, что происходит однофотонное зондирование квазиэнергетического состояния фотонами слабого импульса с частотой  $\omega$ .

Гамильтониан взаимодействия биэкситонов со светом в резонансном приближении имеет вид

$$H_{\text{int}} = -\hbar\mu\{b^+E_0^+E_0^+\exp(-2i\omega_p t) + bE_0^-E_0^-\exp(2i\omega_p t)\} + b^+E_0^+E^+\exp[-i(\omega_p + \omega)t] + bE_0^-E^-\exp[i(\omega_p + \omega)t], \quad (1)$$

где  $b$  – амплитуда биэкситонной волны поляризации среды;  $\mu$  – константа двухфотонного возбуждения биэкситонов;  $E_0^+(E_0^-)$  и  $E^+(E^-)$  – положительно (отрицательно)-частотные компоненты полей мощного и слабого импульсов соответственно. Как показано в [16], константу  $\mu$  можно определить из соотношения  $\mu E_c = g$ , где  $g$  – константа экситон-фотонного взаимодействия. Характерное поле  $E_c$  определяется из закона сохранения энергии:  $E_c^2/8\pi = \hbar\Omega_0 N_c/2$ , где  $\Omega_0$  – собственная частота биэкситонного состояния. Для кристаллов CuCl и CdS величина  $N_c \approx 10^{15} \text{ см}^{-3}$  [16].

Используя (1), легко получить гайзенберговское уравнение для амплитуды биэкситонной волны  $b(t)$ :

$$i\dot{b} = (\Omega_0 - i\gamma)b - \mu E_0^+ E_0^+ \exp(-2i\omega_p t) - \mu E_0^+ E^+ \exp[-i(\omega_p + \omega)t], \quad (2)$$

где  $\gamma$  – феноменологическая константа, учитывающая затухание биэкситонного состояния. Из (2) находим стационарную амплитуду  $b$ . Зная поляризацию системы  $P = \hbar\mu b E_0^- \exp[i(\omega_p + \omega)t]$ , легко определить комплексную восприимчивость  $\chi$  по отношению к полю слабого импульса:

$$\chi = \chi' + i\chi'' = -\frac{\hbar g^2 (E_0/E_c)^2 (\Delta + \Delta_p - i\gamma)}{(\Delta + \Delta_p)^2 + \gamma^2}, \quad (3)$$

где  $\chi'$  и  $\chi''$  – действительная (дисперсионная) и мнимая (абсорбционная) компоненты восприимчивости;  $\Delta_p = \Omega_0/2 - \omega_p$  и  $\Delta = \Omega_0/2 - \omega$  – расстройки резонанса для фотонов сильного и слабого импульсов соответственно. Из (3) видно, что мнимая (абсорбционная) компонента восприимчивости  $\chi''(\Delta)/\chi_0$  (полоса поглощения зондирующего излучения) имеет форму смещенного лоренциана (рис.2), где  $\chi_0 = \hbar g^2/\gamma$ . При  $\gamma \rightarrow 0$  полоса поглощения представляет собой  $\delta$ -образный пик на частоте  $\omega = \Omega_0 - \omega_p$ . Зная  $\chi$ , легко получить выражение для диэлектрической функции кристалла на частоте фотонов слабого импульса:

$$\varepsilon = \varepsilon_\infty \left( 1 - \frac{\Omega_{\text{LT}}}{\Delta + \Delta_p + i\gamma} \right), \quad (4)$$

где

$$\Omega_{\text{LT}} = \frac{\omega_{\text{LT}} J_0}{J_c} \quad (5)$$

– эффективное продольно-поперечное расщепление;  $\omega_{\text{LT}}$  – продольно-поперечное расщепление экситонного состояния;  $J_c = cE_c^2/8\pi$ ;  $J_0$  – интенсивность накачки. Полагая  $\gamma = 0$  и используя волновое уравнение для поля  $E$ , можно получить закон дисперсии на частоте фотонов

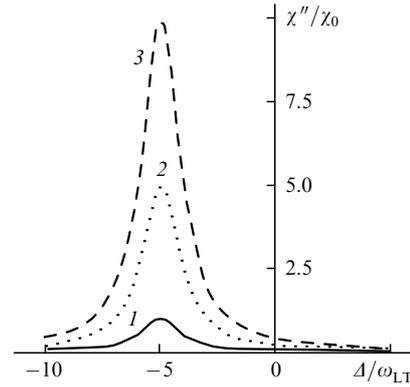


Рис.2. Форма полосы поглощения зондирующего импульса в зависимости от расстройки резонанса пробного импульса  $\Delta/\omega_{\text{LT}}$  при расстройке резонанса поля накачки  $\Delta_p/\omega_{\text{LT}} = 5$  и нормированных интенсивностях импульса накачки  $J_0/J_c$ , равных 1 (1), 5 (2) и 10 (3).

слабого импульса, который имеет вид

$$\frac{c^2 k^2}{\omega^2} = \varepsilon_\infty \left( 1 - \frac{\Omega_{\text{LT}}}{\Delta + \Delta_p} \right), \quad (6)$$

где  $k$  – волновой вектор. Из (6) следует, что закон дисперсии предсказывает существование поляритонных состояний для фотонов слабого импульса в той области частот  $\omega$ , где отсутствуют реальные уровни (рис.3). Наиболее интенсивное взаимодействие возникает на частоте  $\omega = \Omega_0 - \omega_p$ , т.е. на частоте, равной разности частоты образования биэкситона  $\Omega_0$  и частоты фотона  $\omega_p$  мощного импульса. Это значит, что при взаимодействии фотонов мощного импульса с биэкситами на данной частоте может возникнуть виртуальное квазиэнергетическое состояние, с которым взаимодействуют фотоны слабого импульса. При этом оптические переходы из основного состояния кристалла на квазиэнергетический уровень являются однофотонными. Они оптически разрешены. Как следует из (3)–(5), сила осциллятора такого перехода, а также эффективное продольно-поперечное расщепление в области однофотонного взаимодействия поля слабого импульса со средой пропорциональны интенсивности мощного импульса  $J_0$ . Следовательно, с ростом уровня возбуждения эффективное продольно-

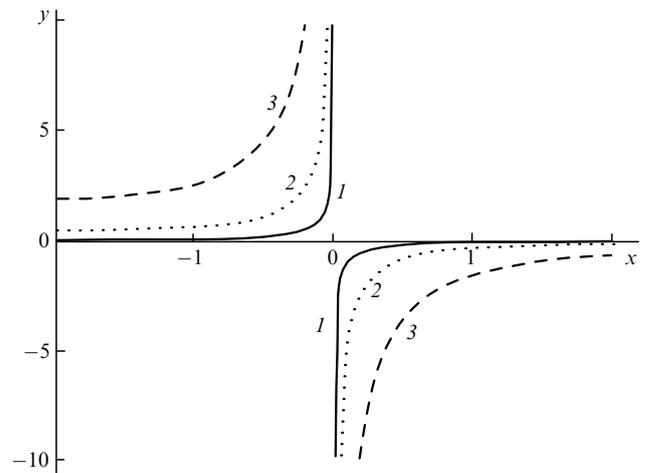


Рис.3. Поляритоноподобный закон дисперсии для фотонов пробного импульса в условиях точного резонанса поля накачки при значениях  $J_0/J_c$ , равных 0.1 (1), 0.5 (2) и 5 (3);  $x = ck/\sqrt{\varepsilon_\infty}(\Omega_0 - \omega_p)$ ,  $y = (\Delta + \Delta_p)/\omega_{\text{LT}}$ .

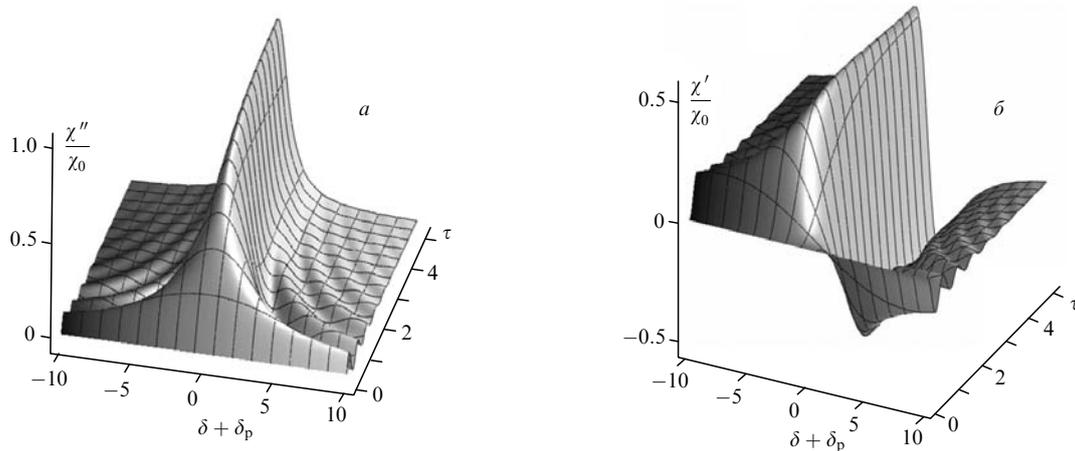


Рис.4. Спектрохронографическое представление абсорбционной (а) и дисперсионной (б) компонент восприимчивости для фотонов пробного импульса.

поперечное расщепление растет, что свидетельствует об усилении процесса однофотонного взаимодействия поля слабого импульса со средой в присутствии мощной накачки. Отметим, что это взаимодействие имеет место в области частот, где отсутствует реальный энергетический уровень.

Из (6) и рис.3 видно, что положение ветвей закона дисперсии поляритоноподобного типа определяется интенсивностью  $J_0$  и частотой  $\omega_p$  мощного импульса.

Полагая в (2), что поле  $E_0(t) = E_0\Theta(t)$  и поле  $E(t) = E\Theta(t)$ , т.е. имея в виду, что падающие импульсы являются ступенчатыми и включаются в момент времени  $t = 0$ , легко получить выражения для восприимчивостей в зависимости от времени:

$$\frac{\chi'}{\chi_0} = -\frac{j_0}{(\delta + \delta_p)^2 + 1} \{(\delta + \delta_p)[1 - \exp(-\tau)] \times \cos[\tau(\delta + \delta_p)] - \exp(-\tau) \sin[\tau(\delta + \delta_p)]\}, \quad (7)$$

$$\frac{\chi''}{\chi_0} = \frac{j_0}{(\delta + \delta_p)^2 + 1} \{1 - \exp(-\tau) \times \cos[\tau(\delta + \delta_p)] - (\delta + \delta_p) \exp(-\tau) \sin[\tau(\delta + \delta_p)]\}, \quad (8)$$

где  $\chi_0 = \hbar g^2/\gamma$ ;  $j_0 = J_0/J_c$ ;  $\delta = \Delta/\gamma$ ;  $\delta_p = \Delta_p/\gamma$ ;  $\tau = \gamma t$ .

На рис.4 показано спектрохронографическое поведение абсорбционной и дисперсионной компонент восприимчивости  $\chi''(\delta + \delta_p)$  и  $\chi'(\delta + \delta_p)$ . Видно, что  $\chi''(\tau)$  (рис.4,а) характеризуется осциллирующим режимом установления стационарного значения. Для фиксированного момента времени  $\chi''$  осциллирует в зависимости от  $\delta$ , а для фиксированного  $\delta$  имеют место осцилляции  $\chi''$  в зависимости от  $\tau$  на начальном этапе установления стационарного состояния. В течение определенных промежутков времени, задаваемых неравенством

$$\exp(-\tau) \cos[\tau(\delta + \delta_p) + \varphi] \geq \cos \varphi \equiv [(\delta + \delta_p)^2 + 1]^{-1/2}, \quad (9)$$

восприимчивость  $\chi''$  оказывается отрицательной, т.е. имеет место усиление слабого импульса, а не его поглощение. Таких промежутков времени тем больше, чем меньше константа затухания биэкситонного состояния.

При больших временах устанавливаются стационарный режим и стационарное значение  $\chi''(\delta + \delta_p)$ . При этом

полоса поглощения зондирующего излучения имеет форму лоренциана. Дисперсионная компонента восприимчивости  $\chi'(\delta + \delta_p)$  (рис.4,б) также характеризуется осциллирующим режимом установления стационарного значения.

### 3. Заключение

Предсказана возможность существования лоренцовского пика однофотонного поглощения слабого зондирующего излучения в условиях двухфотонного возбуждения биэкситонов из основного состояния кристалла мощным импульсом накачки. Закон дисперсии фотонов слабого излучения имеет поляритоноподобную форму, причем продольно-поперечное расщепление растет пропорционально интенсивности мощного импульса. Пик полосы поглощения возникает на частоте, равной разности частот биэкситонного перехода и фотона мощного импульса, где отсутствует реальный уровень. Обсуждается эффект усиления пробного импульса в условиях нестационарного возбуждения среды.

1. Leonelli R., Manar A., Grun J.B., Honerlage B. *Phys. Rev. B*, **45**, 4141 (1992).
2. Smith G.O., Mayer E.J., Kuhl J., Ploog K. *Sol. State Commun.*, **92**, 325 (1994).
3. Finkelstein G., Bar-Ad S., Carmel O., Bar-Joseph I., Levinson Y. *Phys. Rev. B*, **47**, 12964 (1993).
4. Hulin D., Joffre M. *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 3425 (1990).
5. Peyghambarian N., Gibbs H.M., Jewell J. L., Antonetti A., Migus A., Hulin D., Mysyrowicz A. *Phys. Rev. Lett.*, **53**, 2433 (1984).
6. Von Lehmen A., Chemla D.S., Zucker J.E., Heritage J.P. *Opt. Lett.*, **11**, 609 (1985).
7. Shimano R., Kuwata-Gonokami M. *Phys. Rev. Lett.*, **72**, 530 (1994).
8. Хаджи П.И., Коровай А.В., Ткаченко Д.В. *ФТТ*, **44**, 774 (2002).
9. Khadzhi P.I., Corovai A.V., Corovai O.V., Tkachenko D.V. *Moldavian J. Phys. Sci.*, **1**, 152 (2002).
10. Hanamura E. *Phys. Rev. B*, **44**, 8514 (1991).
11. Moskaleiko S.A., Snoko D.W. *Bose-Einstein Condensation of Excitons and Biexcitons and Coherent Nonlinear Optics with Excitons* (Cambridge: Cambridge University Press, 2000).
12. Agarwal G.S. *Phys. Rev. A*, **51**, R2711 (1995).
13. Хаджи П.И., Ткаченко Д.В. *ФТТ*, **40**, 934 (1998).
14. Хаджи П.И. *Кинетика рекомбинационного излучения экситонов и биэкситонов в полупроводниках* (Кишинев: Штиинца, 1977).
15. Бобрышева А.И. *Биэкситоны в полупроводниках* (Кишинев: Штиинца, 1979).
16. Hanamura E. *Sol. State Commun.*, **12**, 951 (1973); *J. Phys. Soc. Jpn.*, **39**, 1516 (1975).