

Тула: Изд. ТПИ, 1983. С. 30—33. [5] Тяпунина Н. А., Благовещенский В. В. // ДАН СССР. 1980. 254. № 4. С. 869—871. [6] Благовещенский В. В., Тяпунина Н. А. // ЭВМ и моделирование дефектов в кристаллах. Л.: Изд. ФТИ им. А. Ф. Иоффе, 1982. С. 96—97. [7] Тяпунина Н. А., Благовещенский В. В. // Phys. Stat. Solidi (a). 1982. 69. P. 77—83. [8] Тяпунина Н. А., Ломакин А. Л., Благовещенский В. В. // Взаимодействие дефектов кристаллической решетки и свойства металлов и сплавов. Тула: Изд. ТПИ, 1985. С. 3—6. [9] Тяпунина Н. А., Благовещенский В. В., Зиненкова Г. М., Ивашкин Ю. А. // Изв. вузов, Физика. 1982. № 6. С. 118—128. [10] Даринская Е. В. Автореф. канд. дис. М. (ИКАН СССР), 1983.

Поступила в редакцию  
26.05.86

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3, ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ. 1987. Т. 28, № 5

УДК 621.315.592

### НАСЫЩЕНИЕ ДВУХФОТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ В ПРЯМОЗОННЫХ ПОЛУПРОВОДНИКАХ

М. Г. Дубенская, Т. М. Ильинова, А. Б. Павельев

(кафедра общей физики и волновых процессов)

Показано, что динамическое изменение разности населенностей является основным механизмом насыщения при двухфотонном возбуждении прямозонного полупроводника типа GaAs пикосекундными импульсами света вплоть до интенсивностей порядка 600 МВт/см<sup>2</sup>.

Экспериментально было обнаружено [1], что при двухфотонном возбуждении кристалла GaAs вблизи края зоны импульсами длительностью  $\tau_n = 2 \cdot 10^{-11}$  с и интенсивностью  $10^8 \div 10^9$  Вт/см<sup>2</sup> наблюдалось отступление от обычного закона двухфотонного поглощения в слабом световом поле. Это отступление может быть обусловлено следующими механизмами: поглощением на свободных носителях, динамическим изменением разности населенностей, изменением статистических свойств лазерного света, насыщением промежуточных примесных уровней. В данной работе проанализирован вклад в двухфотонное поглощение от динамического изменения разности населенностей. Роль других механизмов обсуждается в заключении.

**Теоретическая модель для расчета нелинейного поглощения.** Согласно модели Кейна [2], полупроводник со структурой цинковой обманки имеет невырожденную зону проводимости  $c(\alpha, \beta)$ :  $\epsilon(\mathbf{k}) = E_g + \hbar^2 k^2 / 2m_c$  и трижды вырожденную валентную зону:  $\epsilon(\mathbf{k}) = -\hbar^2 k^2 / 2m_n$  — для зоны тяжелых дырок  $1(\alpha, \beta)$ ,  $\epsilon(\mathbf{k}) = -\hbar^2 k^2 / 2m_h$  — для зоны легких дырок  $2(\alpha, \beta)$ ,  $\epsilon(\mathbf{k}) = -\Delta - \hbar^2 k^2 / 2m_\Delta$  — для зоны, отщепленной за счет спин-орбитального взаимодействия  $3(\alpha, \beta)$ . Здесь  $E_g$  — ширина запрещенной зоны,  $\Delta$  — величина спин-орбитального отщепления,  $m_c$  — эффективная масса электрона,  $m_n$  и  $m_h$  — эффективные массы тяжелых и легких дырок соответственно,  $m_\Delta$  — эффективная масса дырки в отщепленной зоне,  $\alpha$  и  $\beta$  соответствуют противоположным ориентациям спина. Вблизи дна зоны зависимость  $\epsilon(\mathbf{k})$  можно считать параболической и изотропной.

Рассматривались переходы из зон тяжелых  $1(\alpha, \beta)$  и легких  $2(\alpha, \beta)$  дырок в зону проводимости  $c(\alpha, \beta)$ . Кинетическое уравнение

для разности населенностей в зонах проводимости и валентной имеет вид

$$\frac{\partial N(\varepsilon, x, t)}{\partial t} = S_{cv}[N] - \sum_i \alpha_i \frac{N(\varepsilon, x, t)}{1 + A_i^2 (\varepsilon - \varepsilon_i^0)^2} |E(x, t)|^4. \quad (1)$$

Уравнение (1) записано для случая некогерентного взаимодействия света с полупроводником в пренебрежении межзонной рекомбинацией ( $T_2 \ll \tau_n \ll T_R$ ). Здесь  $T_2$  — время дефазировки,  $\tau_n$  — длительность возбуждающего импульса,  $T_R$  — время межзонной рекомбинации,  $S_{cv}[N]$  — оператор столкновений носителей друг с другом и с фононами. Величины

$$\alpha_i = \frac{2T_2}{3\hbar^2} \left( \frac{e}{m_0 \omega} \right)^4 \left| \sum_j \frac{e \langle c | \hat{p} | j \rangle \langle j | \hat{p} | v \rangle e}{\varepsilon_j - \varepsilon_v - \hbar \omega} \right|^2$$

имеют смысл вероятностей вынужденных межзонных переходов. В них  $e$  — заряд электрона,  $m_0$  — масса свободного электрона,  $\omega$  — частота лазерного излучения,  $e$  — вектор поляризации излучения,  $\hat{p}$  — оператор импульса электрона. В дальнейшем считаем, что излучение распространяется по  $x$  и линейно поляризовано по  $z$ . Система координат  $(x, y, z)$  совпадает с осями симметрии кристалла. Коэффициенты  $A_i$  равны:

$$A_1 = \frac{T_2}{\hbar} \left( 1 + \frac{m_c}{m_H} \right) \text{ — для зоны тяжелых дырок, } A_2 = \frac{T_2}{\hbar} \left( 1 + \frac{m_c}{m_h} \right) \text{ — для зоны легких дырок. Энергия фотовозбуждения электронов:}$$

$$\varepsilon_0' = \frac{2\hbar\omega - E}{1 + m_c/m_H} \text{ — для тяжелых дырок, } \varepsilon_0'' = \frac{2\hbar\omega - E_g}{1 + m_c/m_h} \text{ — для легких дырок. Суммирование по конечным состояниям}$$

включает 8 возможных переходов из зон  $1(\alpha, \beta)$  и  $2(\alpha, \beta)$  в зону  $c(\alpha, \beta)$ , которые в свою очередь включают суммирование по промежуточным состояниям  $j$ , учитывающее три типичных процесса двухфотонного возбуждения: переходы внутри зоны проводимости, переходы внутри валентной зоны, переходы между различными валентными зонами.

Насыщение двухфотонного поглощения в прямозонных полупроводниках, связанное с динамическим изменением разности населенностей в зоне проводимости и валентной зоне, может быть описано при совместном решении кинетического уравнения (1) и уравнений Максвелла. Чтобы не конкретизировать явный вид оператора  $S_{cv}[N]$ , рассмотрим два предельных случая быстрой ( $\tau_n \gg T_v$ ) и медленной ( $\tau_n \ll T_v$ ) внутризонной релаксации. Здесь  $T_v = \min\{T_{ee}, T_a, T_{LO}\}$  — характерное время внутризонной релаксации, определяемое временами межэлектронных соударений  $T_{ee}$  и временами рассеяния электронов на акустических и оптических фононах ( $T_a$  и  $T_{LO}$  соответственно).

В предельных случаях быстрой и медленной внутризонной релаксации получаем уравнения, отличные от обычного закона двухфотонного поглощения:

$$\frac{\partial I}{\partial x} = - \frac{6\pi^2}{c^2 \eta^2} 2\hbar\omega g_c I^2 \left\{ [\alpha_1(\varepsilon_0') + \alpha_2(\varepsilon_0')] \frac{\sqrt{\varepsilon_0'}}{A_1} + [\alpha_5(\varepsilon_0'') + \alpha_6(\varepsilon_0'')] \frac{\sqrt{\varepsilon_0''}}{A_2} \right\} \exp \left\{ - \frac{48\sqrt{6} \pi^{3/2}}{c^2 \eta^2} \left[ \frac{\alpha_1(\varepsilon_0') + \alpha_2(\varepsilon_0')}{A_1 \varepsilon_0'} + \right. \right.$$

$$+ \frac{\alpha_5(\varepsilon_0'') + \alpha_6(\varepsilon_0'')}{A_2 \varepsilon_0''} \left] \int_0^{\tau_H} I^2(t') dt' \right\} \text{ при } \tau_H \gg T_v, \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial I}{\partial x} = & -\frac{6\pi^2}{c^2 \eta^2} 2\hbar \omega g_c I^2 \left\{ [\alpha_1(\varepsilon_0') + \alpha_2(\varepsilon_0')] \frac{\sqrt{\varepsilon_0'}}{A_1} \exp \left\{ -\frac{128\pi^2}{c^2 \eta^2} \left[ \alpha_1(\varepsilon_0') + \right. \right. \right. \\ & + \alpha_2(\varepsilon_0') + \frac{\alpha_5(\varepsilon_0') + \alpha_6(\varepsilon_0')}{1 + A_2^2(\varepsilon_0' - \varepsilon_0'')^2} \left. \int_0^{\tau_H} I^2(t') dt' \right\} + [\alpha_5(\varepsilon_0'') + \\ & + \alpha_6(\varepsilon_0'')] \frac{\sqrt{\varepsilon_0''}}{A_2} \exp \left\{ -\frac{128\pi^2}{c^2 \eta^2} \left[ \frac{\alpha_1(\varepsilon_0'') + \alpha_2(\varepsilon_0'')}{1 + A_1^2(\varepsilon_0' - \varepsilon_0'')^2} + \right. \right. \\ & \left. \left. + \alpha_5(\varepsilon_0'') + \alpha_6(\varepsilon_0'') \right] \int_0^{\tau_H} I^2(t') dt' \right\} \right\} \text{ при } \tau_H \ll T_v, \quad (3) \end{aligned}$$

где  $I = c\eta |E|^2 / 8\pi$  — интенсивность возбуждающего излучения,  $c$  — скорость света,  $\eta$  — показатель преломления среды,  $g_c = (2mc)^{3/2} / (2\pi^2 \hbar^3)$ , величины  $\alpha_i$  ( $i=1 \div 8$ ) соответствуют 8 возможным переходам из валентных зон 1( $\alpha, \beta$ ) и 2( $\alpha, \beta$ ) в зону проводимости  $c(\alpha, \beta)$ , причем  $\alpha_1 = \alpha_4$ ,  $\alpha_2 = \alpha_3$ ,  $\alpha_5 = \alpha_8$  и  $\alpha_6 = \alpha_7$ . При вычислении  $\alpha_i$  использованы матричные элементы оператора импульса электрона  $\hat{p}$ , взятые из работы [2], где они даны в системе координат ( $x'$ ,  $y'$ ,  $z'$ ), повернутой относительно осей симметрии кристалла таким образом, чтобы волновой вектор электрона  $\mathbf{k}$  был параллелен оси  $z'$ . Переход в исходную систему ( $x$ ,  $y$ ,  $z$ ) осуществляется с помощью преобразования

$$\begin{pmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta \cos \varphi & \cos \theta \sin \varphi & -\sin \theta \\ -\sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ \sin \theta \cos \varphi & \sin \theta \sin \varphi & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix},$$

где  $\theta$ ,  $\varphi$  — полярные углы вектора  $\mathbf{k}$  в системе ( $x$ ,  $y$ ,  $z$ ). Выражения (2), (3) получены после усреднения по всем ориентациям вектора  $\mathbf{k}$ .

Случай быстрой внутризонной релаксации ( $\tau_H \gg T_v$ ) реализуется при плотностях мощности двухфотонного возбуждения более  $10^8$  Вт/см<sup>2</sup>, концентрациях электронов в зоне проводимости  $\sim 10^{17}$  см<sup>-3</sup> и временах межэлектронных соударений  $T_{ee} \sim 10^{-13}$  с. В системе устанавливается больцмановское распределение свободных носителей, которое поддерживается в течение действия импульса благодаря быстрым межэлектронным соударениям. Условие быстрой релаксации удовлетворяют импульсы длительностью  $\tau_H \sim 10^{-11} \div 10^{-12}$  с.

Случай медленной внутризонной релаксации ( $\tau_H \ll T_v$ ) реализуется при плотностях мощности двухфотонного возбуждения менее  $10^6$  Вт/см<sup>2</sup>, создающих концентрации свободных носителей в зоне проводимости не более  $10^{14}$  см<sup>-3</sup>, которые соответствуют времени межэлектронных столкновений  $T_{ee} \sim 10^{-9}$  с. Использование этого приближения накладывает ограничение и на величину кванта энергии  $\hbar\omega$ . Необходимо, чтобы превышение  $\varepsilon_0$  над дном зоны проводимости было меньше кванта оптического фонона  $\hbar\omega_{LO}$  ( $\omega_{LO}$  — частота оптического фонона), тогда электрон-фононная релаксация опре-

деляется рассеянием носителей на акустических фонах с характерными временами  $T_a \sim 10^{-8} \div 10^{-9}$  с. Условию медленной релаксации удовлетворяют импульсы длительностью  $\tau_n \sim 10^{-10}$  с.

Насыщение двухфотонного поглощения описывается экспоненциальными членами в (2) и (3).

**Численный расчет насыщения двухфотонного поглощения.** Для численного расчета были взяты полупроводники GaAs при температурах 300 и 77 К и InP при температуре 300 К. Характеристики исследуемых полупроводников помещены в таблице.

Образец	T, К	$E_g$ , эВ	$\Delta$ , эВ	$m_c, m_0$	$m_H, m_0$	$m_n, m_0$	$m_\Delta, m_0$	$\eta$
GaAs	300	1,429	0,34	0,067	0,50	0,068	0,133	10,9
GaAs	77	1,5114	0,33	0,067	0,51	0,082	0,159	10,9
InP	300	1,3455	0,11	0,073	0,85	0,089	0,17	9,56

Согласно (2), изменение интенсивности светового импульса вдоль оси  $x$  в случае быстрой внутризонной релаксации можно записать в виде

$$\frac{\partial I}{\partial x} = -K_2 I^2 \exp \left[ -\kappa \int_0^{\tau_n} I^2(t') dt' \right], \quad (4)$$

где  $K_2$  — константа двухфотонного поглощения в слабом поле,  $\kappa$  — параметр насыщения. Величины  $\kappa$  и  $\tau_n$  определяют пороговую интенсивность, при достижении которой насыщение нелинейного поглоще-

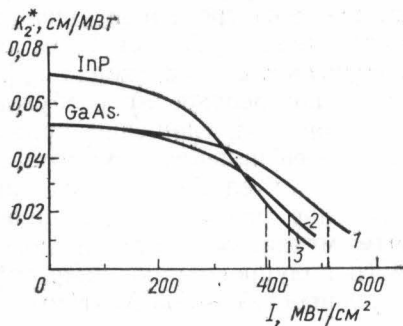


Рис. 1. Зависимость коэффициента двухфотонного поглощения  $K_2^*$  от интенсивности возбуждающего импульса  $I$

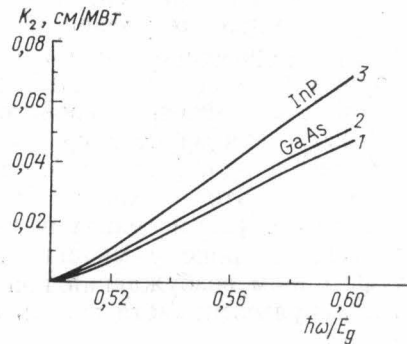


Рис. 2. Зависимость коэффициента двухфотонного поглощения в слабом поле  $K_2$  от частоты возбуждающего импульса  $\hbar\omega$ : GaAs при  $T=77$  К (1) и 300 К (2); InP при  $T=300$  К (3)

ния становится существенным. На рис.1 изображена зависимость коэффициента двухфотонного поглощения  $K_2^*(I) = K_2 \exp \left[ -\kappa \int_0^{\tau_n} I^2(t') dt' \right]$

от интенсивности светового импульса в случае быстрой внутризонной релаксации. При вычислении интеграл считался в первом приближении равным  $I^2 \tau_n$ . Длительность возбуждающего импульса  $\tau_n = 20$  пс, частота излучения  $\hbar\omega = 0,6 E_g$ . Кривая 1 рассчитана для кристалла

GaAs при температуре  $T=77$  К, кривая 2 — для GaAs при  $T=300$  К, кривая 3 — для InP при  $T=300$  К. Интенсивность  $I_n$ , при которой наблюдается уменьшение  $K_2^*(I)$  в  $e$  раз, составляет  $510$  МВт/см<sup>2</sup> для GaAs при  $T=77$  К,  $430$  МВт/см<sup>2</sup> для GaAs при  $T=300$  К и  $390$  МВт/см<sup>2</sup> для InP при  $T=300$  К. Эти данные показывают, что насыщающая интенсивность  $I_n$  растет с понижением температуры и увеличением запрещенной зоны полупроводника. Кривая 1 на рис. 1 хорошо согласуется с экспериментальными данными [1].

В случае медленной внутризонной релаксации насыщение двухфотонного поглощения не наступает, так как интенсивности возбуждающего импульса ( $I < 10^6$  Вт/см<sup>2</sup>) недостаточны для того, чтобы зависимость  $K_2^*(I)$  стала заметной.

**Дисперсия коэффициента двухфотонного поглощения.** На рис. 2 приведены результаты расчета частотной зависимости константы двухфотонного поглощения  $K_2(\hbar\omega)$ . В отличие от работы [3], где дана «универсальная кривая» двухфотонного поглощения, нами учтены переходы из зон тяжелых и легких дырок в зону проводимости, рассмотрена отщепленная зона в качестве промежуточного уровня и точно учтены эффективные массы электронов, тяжелых и легких дырок, эффективная масса в отщепленной зоне. Такой подробный анализ позволил в приближении параболической зонной модели получить хорошее совпадение теоретических и экспериментальных данных по нелинейному поглощению [4].

В заключение скажем несколько слов о других возможных механизмах насыщения двухфотонного поглощения. Оценки показывают [5], что поглощением на свободных носителях можно пренебречь вплоть до интенсивностей  $\sim 600$  МВт/см<sup>2</sup>. Сопоставление экспериментальных данных по анизотропному и изотропному нелинейному поглощению позволяет разделить двухфотонные и двухступенчатые переходы через примесные уровни. Темп насыщения изотропной и анизотропной частей примерно одинаковый, что свидетельствует о сильном двухфотонном поглощении и слабых двухступенчатых переходах [5]. Изменение статистических свойств (степени когерентности) возбуждающего излучения за счет процессов нелинейного поглощения приводит к уменьшению эффективного значения коэффициента двухфотонного поглощения. Этот механизм требует дополнительного исследования.

Таким образом, динамическое изменение разности населенностей является, по нашему мнению, основным механизмом насыщения при двухфотонном возбуждении прямозонного полупроводника пикосекундными импульсами света вплоть до интенсивностей  $\sim 600$  МВт/см<sup>2</sup>.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Ахманов С. А., Желудев Н. И., Задоян Р. С. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1984. 48. С. 521—526. [2] Lee C., Fan N. // Phys. Rev. 1974. B9. P. 3502—3516. [3] Pidgeon C. R. et al. // Phys. Rev. Lett. 1979. 42. P. 1785—1789. [4] Dubenskaya M. G., Zadoyan R. S., Zheludev N. I. // J. Opt. Soc. Amer. 1985. B2. P. 1174—1178. [5] Дубенская М. Г., Задоян Р. С., Ильинова Т. М. // Тез. докл. XII Всесоюз. конф. по когерент. и нелинейн. оптике. М., 1985. Т. 2. С. 583—584.

Поступила в редакцию  
30.05.86