

ГИГАНТСКИЙ ЭКСИТОННЫЙ РЕЗОНАНС В НЕЛИНЕЙНОЙ ОПТИЧЕСКОЙ АКТИВНОСТИ

Н.И.Желудев, В.Ю.Карасев, З.М.Костов, М.С.Нунупаров

В кристалле арсенида галлия экспериментально обнаружен гигантский экситонный резонанс в нелинейной оптической активности.

1. Предметом настоящей статьи является исследование зависящего от интенсивности изменения структуры поляризации мощной линейно поляризованной волны в кристалле арсенида галлия в области однофотонного экситонного резонанса ($\hbar\omega \sim 1,5$ эВ). Угол нелинейного поворота плоскости поляризации превышает 15 град, соответствующая константа нелинейной оптической активности достигает $300 \text{ град} \cdot \text{см} \cdot \text{МВт}^{-1}$.

Нелинейные поляризационные эффекты самовоздействия света в полупроводниках привлекают в последнее время большое внимание. В частности, двухфотонный экситонный резонанс исследован методом спектроскопии нелинейной оптической активности (НОА) в арсениде галлия¹. Нелинейная деполяризация света^{2,3} и самовращение эллипса поляризации⁴ при двухфотонном биекситонном резонансе обнаружены в кристаллах хлористой меди. Интерес к подобному сорту исследованиям связан в первую очередь с новыми спектроскопическими возможностями для изучения нелинейных восприимчивостей полупроводников и с перспективами использования указанных эффектов в оптических бистабильных устройствах обработки информации нового типа, кодирующих сигнал состоянием поляризации света.

2. В кристаллах симметрии цинковой обманки ($\bar{4}3m$, арсенид галлия) нелинейное, зависящее от интенсивности изменение структуры поляризации линейно поляризованного света может быть связано только с эффектами нелинейной гиротропии и нелинейной анизотропии (нелинейная оптическая активность)⁵. На возможность наблюдения больших удельных констант самовоздействия света в районе экситонных и биекситонных резонансов в кристаллах нами впервые указывалось в работе⁶. НОА, связанная с нелинейной анизотропией, обусловленной гофрировкой зонной структуры кристалла, возрастает вблизи частот экситонного поглощения из-за резонансного характера соответствующей восприимчивости. В нелинейной гиротропии помимо резонансных эффектов имеются другие особенности. Эффекты пространственной дисперсии в оптике, в том числе нелинейные эффекты, определяются, как известно, малым параметром a/λ , где λ — длина волны света, a — характерный размер в среде (параметр решетки в нерезонансном случае). В районе экситонного резонанса в качестве характерного размера выступает боровский радиус экситона $R_B = 150 \text{ \AA}$ (GaAs)¹ и доминирующий в нерезонансном случае вклад нелинейной анизотропии в поляризационное самовоздействие (угол нелинейного поворота $\beta^{(2)}$) сравнивается и даже становится меньше вклада, определяемого пространственной дисперсией нелинейности (угол $\beta^{(1)}$): $\beta^{(1)}/\beta^{(2)} \simeq 16\pi na/\lambda \gg 1$.

3. Экспериментально исследовались образцы арсенида галлия толщиной $2 \div 70$ мкм. Измерения проводились при температуре кристалла 100 K . В качестве источника излучения применялся параметрический генератор света на кристалле LiIO_3 (частота повторения импульсов ~ 2 Гц, длительность моноимпульсов ~ 15 пс, ширина спектра излучения ~ 2 мэВ).

В области однофотонного экситонного резонанса обнаружена зависящая от интенсивности деполяризация излучения, достигающая десяти процентов⁸. Свет, падающий на кристалл в направлении $\langle 001 \rangle$, имел линейную поляризацию, составляющую угол $\varphi = \pi/8$ с осью $\langle 100 \rangle$. Под степенью деполяризации прошедшего света мы понимаем отношение энергий в импульсе для компонент излучения на выходе из кристалла, поляризованных перпендикулярно и параллельно исходному направлению. Деполяризация растет в резонансе с увеличением уровня возбуждения, вплоть до $Q = 1$ пДж/мкм². При дальнейшем увеличении уровня возбуждения степень деполяризации уменьшается, линия уширяется и при уровне возбуждения, превышающем 20 пДж/мкм², полностью деградирует. Относительный вклад поворота плоскости поляризации (главной оси эллипса) в исследуемом кристалле в деполяризованную компоненту составляет в резонансе 70% (смотри рис. 1).

При наблюдении прошедшего кристалл света в анализатор, установленный под углом 45° к поляризатору, коэффициент пропускания анализатора зависит только от угла поворота плоскости поляризации (главной оси эллипса) в нелинейном кристалле, но не от величины индуцированной эллиптичности или доли некогерентной составляющей в световом потоке, что позволяет измерить частотные дисперсии "чистого" вращения плоскости поляризации (смотри рис. 2). Угол нелинейного поворота превышает 15 градусов, вращение имеет резо-

¹) Большой интерес представляет, на наш взгляд, исследование влияния на НОА пространственной дисперсии "плазменного типа", связанной с когерентным пространственным переносом возбуждения экситоном на длину свободного пробега⁷.

нансный характер, центр линии совпадает по частоте с максимумом линии деполяризации. Существенно, что для различных ориентаций кристалла ($\varphi = \pi/8$ и $\varphi = -\pi/8$) угол вращения имеет противоположный знак, причем максимальные значения угла поворота для двух указанных ориентаций отличаются. Эксперименты, проводившиеся как при регистрации излучения, прошедшего поляризатор, через монохроматор, перестраиваемый синхронно с ПГС (ширина щели $\sim 0,2$ мэВ), и при непосредственном детектировании света, прошедшего поляризатор, образец и анализатор, дали идентичные результаты.

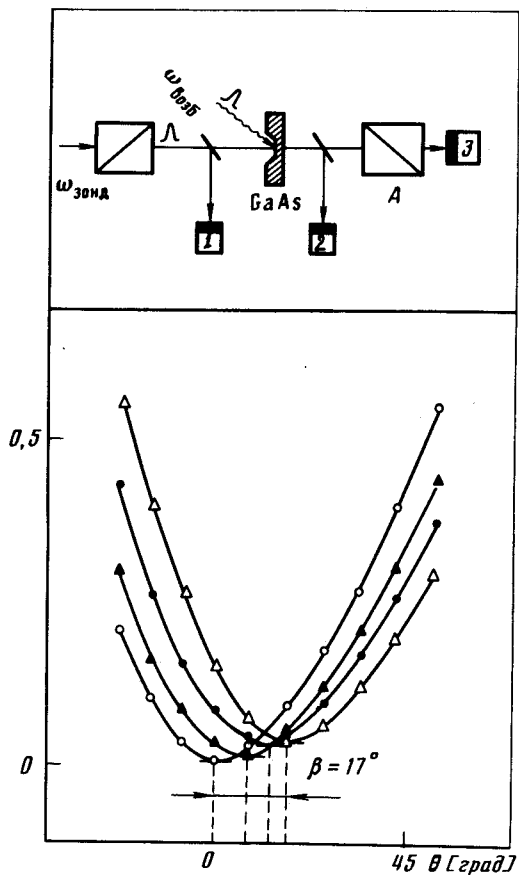


Рис. 1

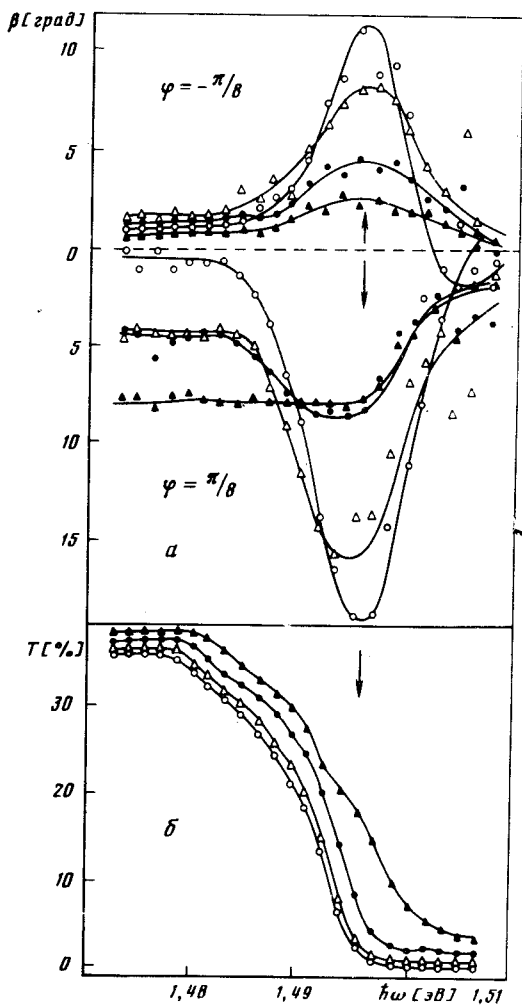


Рис. 2

Рис. 1. Зависимость коэффициента пропускания системы поляризатор – образец – анализатор от относительного положения поляризатора и анализатора (угол θ) при различных интенсивностях воздействия: \bullet – 0,4 пДж/мкм², Δ – 1,0 пДж/мкм², \blacktriangledown – 6,0 пДж/мкм², \circ – “пустой” поляриметр без образца. На врезке показана оптическая схема эксперимента: А – анализатор; П – поляризатор; 1, 2, 3 – фотоприемные устройства

Рис. 2. Зависимость угла β нелинейного вращения (а) и пропускания T образца (б) толщиной 70 мкм от энергии кванта возбуждения $\hbar\omega$ при различных интенсивностях воздействия, $\varphi = \pi/8$ (Е; (100)): \circ – 1,6 пДж/мкм², Δ – 3,0 пДж/мкм², \bullet – 5,0 пДж/мкм², \blacktriangledown – 15 пДж/мкм². Стрелкой указано частотное положение экситонного резонанса

4. Обсуждая возможные альтернативные нелинейной оптической активности механизмы деполяризации света, необходимо принимать во внимание, что возникновение компоненты излучения, поляризованной ортогонально излучению накачки, не может быть связано с дву-

лучепреломлением, обусловленным пространственной дисперсией второго порядка (поскольку направление $\langle 001 \rangle$ — оптическая ось) или многочастичным рассеянием (поскольку ортогональная компонента появляется преимущественно в результате "чистого" вращения плоскости поляризации, имеющего нелинейный характер. Наблюдаемый поворот поляризации не может быть объяснен эффектом самовращения эллипса поляризации ⁴ в виду того, что : а) падающее на кристалл излучение линейно поляризовано, б) знак поворота плоскости поляризации зависит от взаимной ориентации вектора электрического поля зондирующей волны и осей симметрии кристалла, что свойственно для НОА в кристаллах этой симметрии ¹, но не свойственно явлению самовращения эллипса поляризации. Экситонная природа наблюдаемого гигантского эффекта НОА доказывается: а) частотным положением максимума поляризационного резонанса, совпадающего с резонансом поглощения на $1s$ состоянии свободного экситона в GaAs, б) значительным уменьшением эффекта самовращения поляризации при увеличении температуры образца до 300 К (обусловлено увеличением скорости термодиссоциации экситонов), в) деградацией поляризационного резонанса с ростом интенсивности возбуждения вследствие эффекта экранировки при высоких плотностях экситонов ⁹ (см. рис. 2, а).

5. Экспериментально обнаружено, что можно добиться деградации экситонного резонанса, не только увеличивая интенсивность зондирующего пучка, но и осуществляя двухфотонную генерацию свободных носителей в исследуемом кристалле при нелинейном поглощении излучения с длиной волны 1,06 мкм ($\hbar\omega_{\text{возб}} = 1,12$ эВ). Полная деградация экситонного резонанса при задержке зондирующего импульса ($\hbar\omega_{\text{зонд}} = 1,497$ эВ) относительно возбуждающего на 20 пс наступает при интенсивности воздействия на длине волны 1,06 мкм $Q^{\text{возб}} = 75$ пДж/мкм² ($Q^{\text{зонд}} = 1$ пДж/мкм²), что соответствует плотности свободных носителей $N \sim 5 \cdot 10^{17}$ см⁻³. Полное восстановление экситонного резонанса в результате рекомбинации электронно-дырочных пар наступает через 2,5 нс после возбуждения.

6. Нелинейное вращение и деполаризация наблюдаются с отношением сигнал/шум 1000 ÷ 100 в относительно толстых образцах в условиях нелинейного просветления кристалла (см. рис. 2, б). Заметим, что в спектрах поглощения экситонного резонанса наблюдать не удалось, т. е. метод поляризационного самовоздействия является исключительно чувствительным для спектроскопии экситонов.

Авторы выражают благодарность С.А.Ахманову за идею настоящего исследования и полезные обсуждения результатов работы.

Литература

1. *Dubenskaya M.G., Zadayan R.S., Zheludev N.I.* J. Opt. Soc. Am., 1985, **2B**, 1174.
2. *Itoh T., Kahotno T.* J. Phys. Soc. Jpn., 1982, **51**, 707; 1985, **54**, 2779.
3. *Zheludev N.I.* J. Phys. Soc., Jpn., 1985, **54**, 2778.
4. *Kivata M., Nagasava N.* J. Phys. Soc. Jpn, 1982, **51**, 2591.
5. *Желудев Н.И., Петренко А.Д.* Кристаллография, 1984, **29**, 1045.
6. *Ахманов С.А., Жданов Б.В., Желудев Н.И., Ковригин А.И., Кузнецов В.И.* Письма в ЖЭТФ, 1979, **46**, 702.
7. *Железняков В.В., Кочаровский В.В., Кочаровский В.В.* Препринт ИПФ АН СССР № 126/1985, г. Горький.
8. *Желудев Н.И., Костов З.М.* Препринт физ. фак. МГУ № 34/1985, г. М.
9. *Ulbrich R., Fehrenbach G.W., Schafer W.* J. Lum., 1985, **30**, 154.