Нелинейное распространение света в полупроводниках при двухфотонном возбуждении биэкситонов

© А.Х. Ротару, В.З. Трончу*

Молдавский государственный университет, Кишинев, Молдавия * Институт прикладной физики Академии наук Молдавии, 277028 Кишинев, Молдавия

(Поступила в Редакцию 7 апреля 1998 г.)

Изучено стационарное и нестационарное прохождение света через кольцевой резонатор при двухфотонном возбуждении биэкситонов из основного состояния кристалла. Найдены значения параметров, при которых в системе возможны образования сложных нелинейных временных структур. Обсуждена возможность экспериментального наблюдения предсказанных эффектов.

В последнее время уделяется большое внимание изучению кооперативных процессов в экситонной области спектра. В работах [1,2] исходя из уравнений Келдыша, описывающих слабонеоднородные в пространстве и во времени когерентные экситоны и фотоны, построена теория оптической бистабильности и динамического хаоса в экситонной области спектра в геометрии кольцевого резонатора. В [3] предсказана возможность наблюдения и разрушения динамического оптического хаоса в системе когерентных экситонов и фотонов под действием внешней периодической силы. Работа [4] посвящена изучению стационарной и нестационарной оптической бистабильности (ОБ), мультистабильности, оптических переключений и самопульсаций в системе когерентных экситонов и биэкситонов в полупроводниках с учетом экситон-фотонного взаимодействия и оптической конверсии экситонов в биэкситоны. В [5] построена теория ОБ и автоколебания в конденсированных средах с участием экситонов и биэкситонов. В качестве модели выбран кристалл CuCl, для которого имеются убедительные экспериментальные доказательства существования биэкситона. Показано, что в зависимости от параметров системы возможны как регулярные, так и стохастические самопульсации с образованием в фазовом пространстве сложных предельных циклов и странных аттракторов.

Предсказанные Москаленко [6] и Лампертом [7] биэкситоны широко применяются для интерпретации новых полос поглощения и люминесценции в полупроводниках. По сути дела биэкситоника стала самостоятельной областью физики конденсированного состояния. Наиболее убедительные экспериментальные доказательства существования биэкситонов основаны на наблюдениях двухфотонного возбуждения биэкситонов из основного состояния кристалла (CuCl, CuBr и др.) [8-11]. Более того, Ханамура [12] впервые показал, что процесс двухфотонного возбуждения биэкситонов из основного состояния кристалла характеризуется гигантской силой осциллятора. Благодаря этому метод двухфотонного возбуждения биэкситонов получил широкое распространение при экспериментальном исследовании биэкситонных состояний. При этом полоса поглощения имеет узкую б-образную

форму. Прямое рождение биэкситонов благодаря гигантскому двухфотонном поглощению света в кристалле CuCl впервые наблюдали Гейл и Мисирович [13–15].

Данная работа посвящена изучению стационарного и нестационарного прохождения света через кольцевой резонатор при двухфотонном возбуждении биэкситонов из основного состояния кристалла. Найдены значения параметров, при которых в системе возможны образования сложных нелинейных временных структур. Обсуждена возможность экспериментального наблюдения предсказанных эффектов.

Рассмотрим явление оптической самоорганизации в простейшей модели кольцевого резонатора. Фотоны распространяющегося импульса возбуждают биэкситоны из основного состояния кристалла благодаря процессу двухфотонного поглощения.

Гамильтониан задачи состоит из суммы гамильтонианов свободных биэкситонов и поля и гамильтониана взаимодействия поля с системой когерентных биэкситонов, который в принятой модели имеет вид

$$H_{\rm int} = -\bar{h}\mu \left(E^- E^- b + b^+ E^+ E^+ \right), \tag{1}$$

где b^+ — оператор рождения биэкситона, μ — константа двухфотонного возбуждения биэкситонов из основного состояния кристалла [12], $E^+(E^-)$ — положительно (отрицательно)-частотная компонента электрического поля электромагнитной волны.

Уравнение движения для амплитуды биэкситонной волны *b* имеет вид

$$i\frac{\partial b}{\partial t} = \omega_{\rm biex}b - i\gamma_m b - \mu E^+ E^+, \qquad (2)$$

где $h\omega_{\text{biex}}$ — энергия образования биэкситонов, γ_m — константа затухания биэкситонов, которая определяет скорость ухода квазичастиц из когерентной моды в некогерентные и была введена в уравнение движения феноменологически.

В силу того, что фотонная мода является когерентной и ее амплитуда макроскопически велика, задача решается



Рис. 1. Схема кольцевого резонатора. $E_1 E_R$ и E_T — амплитуды падающего, отраженного и прошедшего полей соответственно.

полуклассически с использованием волнового уравнения

$$c^{2}\frac{\partial^{2}E^{+}}{\partial z^{2}} - \frac{\partial^{2}E^{+}}{\partial t^{2}} = 8\pi\bar{h}\mu\frac{\partial^{2}E^{-}b}{\partial t^{2}}.$$
 (3)

Решения уравнений (2), (3) представим в виде произведения медленно меняющихся огибающих и быстроосциллирующих компонент

$$E^+ = e^+ \exp(ikz - i\omega t), \qquad b = \tilde{B}\exp(2ikz - 2i\omega t),$$
(4)

где ω — частота электромагнитной волны.

Дальнейшее рассмотрение будем вести в приближении медленно меняющихся огибающих, справедливых при условии

$$\left. \frac{\partial e^+}{\partial t} \right| \ll \omega |e^+|, \qquad \left| \frac{\partial e^+}{\partial z} \right| \ll k |e^+| \dots .$$

Это означает, что огибающие — достаточно плавные функции по сравнению с быстроосциллирующей частью.

Поскольку настоящий этап изучения ОБ, оптических переключений и самопульсаций характеризуется тем, что они рассматриваются для конкретных оптических приборов соответствующей геометрией опыта, изучим эти явления биэкситонов в геометрии кольцевого резонатора. Пусть образец длиной *L* помещен между входным и выходным зеркалами резонатора, которые характеризуются коэффициентом пропускания *T*. Два других зеркала считаются идеально отражающими (рис. 1). Граничные условия для кольцевого резонатора имеют вид

$$E(0,t) = \sqrt{T}E_I + RE(L,t-\Delta t)e^{iF}, \quad E_T = \sqrt{T}E(L,t),$$

где E_I — амплитуда поля на входе резонатора (накачка), E_T — амплитуда поля на выходе резонатора, R = 1 - T — коэффициент отражения зеркал I, и 2 резонатора, Δt — время запаздывания, вносимое обратной связью, $\Delta t = (L+2l)/c_0$, c_0 — скорость света в вакууме, $F = kL + k_0(2l + L)$ — набег фазы поля в резонаторе, k_0 — волновой вектор поля в вакууме.

Подставляя (4) в (2), (3) в приближении медленно меняющихся амплитуд, пренебрегая эффектами пространственной дисперсии биэкситонов, которые в актуальной области спектра несущественны и переходя к безразмерным величинам

$$\delta = rac{2\omega - \omega_{ ext{biex}}}{\gamma_m}, \quad C = rac{lpha L}{T}, \quad lpha = rac{4\pi h \omega \gamma_m}{k c^2 \mu}, \quad au = t \gamma_m,$$

$$\sigma = rac{c^2 kT}{L\gamma_m}, \quad \Delta = rac{\omega^2 - c^2 k^2}{2\omega\gamma_m}, \quad B = rac{ ilde B}{B_s}, \quad B_s = \sqrt{rac{\gamma_m}{\mu}},$$

получаем следующие укороченные уравнения:

$$\frac{\partial X_1}{\partial \tau} = \sigma C(X_2 B_1 - X_1 B_2) - \frac{\sigma}{T} \frac{\partial X_1}{\partial Z} - \Delta X_2, \quad (5)$$

$$\frac{\partial X_2}{\partial \tau} = \sigma C (X_1 B_1 - X_2 B_2) - \frac{\sigma}{T} \frac{\partial X_2}{\partial Z} + \Delta X_1, \qquad (6)$$

$$\frac{\partial B_1}{\partial \tau} = -\delta B_2 - B_1 - 2X_1 X_2,\tag{7}$$

$$\frac{\partial B_2}{\partial \tau} = \delta B_1 - B_2 - X_2^2 + X_1^2, \tag{8}$$

где $X_1 = \operatorname{Re} e^+, X_2 = \operatorname{Im} e^+, B_1 = \operatorname{Re} \tilde{B}, B_2 = \operatorname{Im} \tilde{B}.$

Система нелинейных дифференциальных уравнений (5)–(8) описывает пространственно-временну́ю эволюцию когерентных биэкситонов и фотонов в конденсированных средах в приближении плавных огибающих и является основой для дальнейшего рассмотрения. Найти точные аналитические решения системы нелинейных уравнений в частных производных является очень сложной задачей. Однако основные черты нелинейного прохождения света можно выявить в модели среднего поля, которая широко используется в теории оптической бистабильности. Математически она соответствует заме-

He
$$\int_{0}^{L} E(X) dX$$
 Ha $E(L)L$.

В этом приближении уравнения (5), (6) можно проинтегрировать по координате

$$\frac{dX_1}{d\tau} = \sigma \left(C(X_2 B_1 - X_1 B_2) - \frac{X_1}{T} + \frac{R}{T} (X_1 \cos F - X_2 \sin F) - \Delta X_1 - Y \right), \quad (9)$$

$$\frac{dX_2}{d\tau} = \sigma \left(C(X_1 B_1 + X_2 B_2) - \frac{X_2}{T} + \frac{R}{T} (X_2 \cos F + X_1 \sin F) + \Delta X_1 \right), \quad (10)$$

где использовались граничные условия для нормированных амплитуд

$$TY + R \Big[X_1(L, t - \Delta t) \cos F - X_2(L, t - \Delta t) \sin F \Big] = X_1(0, t)$$
$$R \Big[X_2(L, t - \Delta t) \cos F + X_1(L, t - \Delta t) \sin F \Big] = X_2(o, t),$$
$$E_1 = Y \left(\frac{\gamma_m}{\mu} \right)^{\frac{1}{4}}, \qquad E_T = X \left(\frac{\gamma_m}{\mu} \right)^{\frac{1}{4}}.$$

Физика твердого тела, 1998, том 40, № 11



Рис. 2. Стационарная зависимость амплитуды выходящего из резонатора излучения X_{st} от амплитуды падающего Y_{st} при значениях параметров C = 2, $F = \pi/2 + 2\pi n$, $\delta = 2$, $\sigma = 0.1$, T = 0.1 (*a*), форма внешнего импульса параболической формы Y (*b*), форма импульса на выходе из резонатора X (*c*) и динамическая зависимость X(Y) (*d*).

Уравнения (7)–(10) описывают динамическую эволюцию когерентных фотонов и биэкситонов в приближении среднего поля. В стационарном случае $(dX_1/d\tau = dX_2/d\tau = dB_1/d\tau = dB_2/d\tau = 0)$ получаем уравнение состояния, которое определяет амплутуду выходящего излучения (X_{st}) как функцию падающего (Y_{st}) в приближении среднего поля

$$Y_{\rm st}^2 = X_{\rm st}^2 \left(\frac{1 - R\cos F}{T} + C\frac{X_{\rm st}^2}{1 + \delta^2}\right)^2 + \left(\frac{R\sin F}{T} + \frac{\Delta}{\sigma} - C\frac{X_{\rm st}^2\delta}{1 + \delta^2}\right).$$
(11)

На рис. 2, a представлена стационарная зависимость амплитуды X_{st} от амплитуды Y_{st} при малых интенсивностях падающего сигнала. Как видно из графика, эта зависимость является однозначной.

Одним из важных и принципиальных вопросов является исследование стабильности стационарных состояний. Исследование стабильности стационарных состояний по отношению к малым возмущениям определяется характеристическим уравнением для якобиана системы (7)–(10). Если действительная часть всех корней характеристического уравнения является отрицательной, то соответствующие стационарные состояния являются устойчивыми по отношению к малым возмущениям. С учетом критерия Рауса–Гурвица исследована устойчивость стационарных состояний при различных значениях параметров и при разных интенсивностях падающего излучения. Как видно из рис. 2, *a*, при малых интенсивностях падающего излучения все стационарные точки являются стабильными.

Как правило, в эксперименте на вход резонатора подаются импульсы различной формы и анализируется их деформация на выходе. Впервые такой эксперимент провели Бишофбергер и Шен [16]. Теоретически и экспериментально было изучено поведение нелинейного интерферометра Фабри-Перо, заполненного керровской средой, под действием импульсов различной формы. Авторы получили отличное согласие теории и эксперимента. Нами проведен компьютерный эксперимент, в котором система нелинейных дифференциальных уравнений (7)-(10), которая описывает динамику когерентных фотонов и биэкситонов с учетом граничных условий для кольцевого резонатора, решается численно, причем внешняя накачка $Y(\tau)$ — функция времени параболической формы (рис. 2, b). Результат проведенного эксперимента представлен на рис. 2, b-d. Наблюдается деформация исходного импульса (рис. 2, c), и система стремится к стационарному поведению (рис. 2, d). Результатам компьютерного эксперимента можно сопоставить результаты экспериментальных работ [17–19].

При больших интенсивностях падающего излучения появляется участок, где стационарные состояния являются нестабильными (рис. 3, *a*). На рис. 3, *b*–*d* представлена динамика процесса, когда в системе имеется неустойчивый участок. На неустойчивом участке при постоянной накачке возникают нелинейные самопульсации, а фазовая траектория с течением времени выходит на устойчивый предельный цикл (рис. 4, *a*) (эволюция



Рис. 3. Стационарная зависимость X_{st} (Y_{st}) при значениях параметров $F = 2\pi n$, c = 2, $\delta = 2$, $\sigma = 1$, T = 0.1 (a), форма внешнего импульса параболической формы Y (b), форма импульса на выходе из резонатора X (c) и динамическая зависимость X(Y) (d).



Рис. 4. Временная эволюция системы при постоянной накачке и значениях параметров $F = 2\pi n$, C = 2, $\delta = 2$, $\sigma = 1$, T = 0.1. a - Y = 60, эволюция точки A (рис. 3, a), b - Y = 65, эволюция точки B (рис. 3, a).

точки A, показанной на рис. 3, a). По мере передвижения изображающей точки вправо колебания становятся более сложными, в спектре появляются все новые и новые гармоники (рис. 4, b). Происходит бифуркация удвоения периода и появление хаотического режима. Одновременно приходится увеличить интенсивность падающего излучения, что приводит к быстрому росту плотности квазичастиц.

В заключение обсудим возможность экспериментального наблюдения самопульсаций биэкситонов. Изученная нами модель более всего справедлива для кристаллов типа CuCl, где энергия связи биэкситона порядка 40 MeV, длина образца L = 900 Å, $\gamma_m = 10^{12} \text{ s}^{-1}$, T = 0.1. Тогда получаем, что критическая мощность, при которой возможно наблюдение изучаемых нелинейных явлений, порядка 7 m/Wcm², а плотность биэкситонов порядка 10^{15} cm⁻³, что соответствует следующим значениям наших параметров: $F = 2\pi n$, C = 2, $\delta = 2$, $\sigma = 1$, T = 0.1.

Таким образом, приведенные нами численные оценки позволяют сделать вывод о реальной возможности наблюдения самопульсаций в системе когерентных биэкситонов в конденсированных средах.

Список литературы

- [1] Б.Ш. Парканский, А.Х. Ротару. ЖЭТФ 99, 899 (1991).
- [2] С.А. Москаленко, А.Х. Ротару, В.А. Залож. ФТТ **31**, *3*, 265 (1989).
- [3] А.Х. Ротару, В.З. Трончу. ФТТ 36, 1, 90 (1994).
- [4] В.А. Залож, А.Х. Ротару, В.З. Трончу. ЖЭТФ 103, 994 (1993).

- [5] В.А. Залож, А.Х. Ротару, В.З. Трончу. ЖЭТФ 105, 4, 164 (1994).
- [6] С.А. Москаленко. Опт. и спектр. 5, 2, 147 (1958).
- [7] M. Lampert. Phys. Rev. Lett. 1, 7, 450 (1958).
- [8] S. Nikitine, A. Mysyrowicz, J. Grun Helvetica. Phys. Acta. 41, 1058 (1968).
- [9] R. Knox, S. Nikitine, A. Mysyrowicz. Opt. Comm. 1, 19 (1969).
- [10] H. Souma. J. Phys. Soc. Jap. 29, 697 (1970).
- [11] N. Nagasawa. J. Lumin. 12/13, 587 (1976).
- [12] E. Hanamura. Solid State Commun. 12, 9, 951 (1973).
- [13] G. Gale, A. Mysyrowicz. J. Phys. 35, 4 Suppl., 43 (1974).
- [14] G. Gale, A. Mysyrowicz. Phys. Rev. Lett. 32, 13, 724 (1974).
- [15] G. Gale, A. Mysyrowicz. Phys. Lett. A54, 4, 321 (1975).
- [16] T. Bischofberger, Y. Shen. Phys. Rev. A19, 1169 (1979).
- [17] B. Levy, J. Bigot, B. Henerlag. Solid State Commun. 48, 705 (1983).
- [18] N. Peyghambarian, H. Gibbs. Phys. Rev. Lett. 51, 1692 (1983).
- [19] H.M. Gibbs, G. Khitrova, N. Peghambarian. Nonlinear photonics. V. 30. Springer Series in Electronics and Photonics. Springer–Verlag, Berlin (1990). 210 p.