

УДК 621.315.592

**ИССЛЕДОВАНИЕ БИЭКСИТОНОВ  
В КРИСТАЛЛАХ Ры<sub>2</sub> МЕТОДАМИ  
НЕЛИНЕЙНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ**

*M. С. Бродин, В. Н. Кадан, М. Г. Мацко*

Из спектров резонансного двухфотонного поглощения и гиперкомбинационного рассеяния через биэкситонное состояние определены энергия образования биэкситонов в кристаллах 2Н- и 4Н-PbI<sub>2</sub>. Оценена сила осциллятора экситон-биэкситонного перехода в 2Н-PbI<sub>2</sub>, а также измерены параметры поляритонной дисперсии в 4Н-PbI<sub>2</sub>. Обнаружена генерация сигнала вырожденного четырехвольнового смешивания при участии двухфотонного резонанса на биэкситоне в 4Н-PbI<sub>2</sub>.

Известно, что в области двухфотонного возбуждения биэкситона может наблюдаться ряд нелинейных эффектов, таких как ДФП, ГКР и ЧВС, через промежуточное биэкситонное состояние. Эти же эффекты могут быть использованы как средство наблюдения и изучения биэкситонов и экситонных поляритонов. В настоящей работе изучается протекание таких процессов вблизи края экситонного поглощения кристаллов PbI<sub>2</sub> с целью показать, проявляются ли (и при каких условиях) биэкситоны в кристаллах этого типа, и если да, то определить их основные параметры. Существование биэкситонов в кристаллах PbI<sub>2</sub> 2Н-политипа установлено в единственной работе [1]. Широко распространенный политип 4Н кристалла PbI<sub>2</sub> в этом отношении не исследован. Помимо энергии образования биэкситона в 2Н- и 4Н-политипах PbI<sub>2</sub> в настоящей работе оценена сила осциллятора экситон-биэкситонного перехода в 2Н-PbI<sub>2</sub> — важная характеристика биэкситонного состояния, определяющая эффективности нелинейных процессов, протекающих при его участии. Из экспериментов по ГКР определены параметры дисперсии экситонных поляритонов в 4Н-PbI<sub>2</sub>. Исследовано также явление вырожденного ЧВС через промежуточное биэкситонное состояние в этом кристалле.

Для возбуждения исследуемых кристаллов нами использовался перестраиваемый лазер на красителе кумарин-30 с начакой от N<sub>2</sub> лазера. Пиковая мощность излучения перестраиваемого лазера 2 кВт, длительность импульса 5 нс, частота повторения импульсов 12 Гц, ширина линии генерации 0.4 мэВ. Все измерения выполнялись при температуре кристалла 4.2 К. Спектры излучения регистрировались на дифракционном спектрометре PGS-2.

Для измерений ДФП нами использовались разновидность метода, впервые предложенная авторами работы [2], где в качестве источника зондирующего излучения со сплошным спектром используется собственная люминесценция кристалла. Наличие резонансного двухфотонного образования биэкситона определяется по возникновению специфического провала перепоглощения в сплошном зондирующем люминесцентном спектре, положение которого  $\hbar\omega_{\pi}$  зависит от энергии кванта возбуждения  $\hbar\omega_0$ .

Рассмотрим экспериментальные результаты. На рис. 1, а показаны спектры люминесценции монокристаллического образца  $2H\text{-PbI}_2$  толщиной 50 мкм, полученные при плотности мощности возбуждения  $I_0 = 200 \text{ кВт/см}^2$ . Возбуждение осуществлялось перпендикулярно поверхности пластинки  $2H\text{-PbI}_2$  в направлении оптической оси, а регистрировалось излучение, выходящее в обратном направлении под углом  $45^\circ$  к поверхности кристалла. Каждому спектру (рис. 1, а) соответствуют различные энергии кванта излучения возбуждающего лазера  $\hbar\omega_0$  в диапазоне 2.5088—2.5188 эВ выше энергии поперечного экситона  $E_T = 2.4982 \text{ эВ}$  [3, 4]. Природа люминесценции в данном случае принципиального значения не имеет и не анализируется. Основное, на что здесь следует обратить внимание, — это интенсивные провалы перепоглощения, положение максимумов которых  $\hbar\omega_n$  зависит от  $\hbar\omega_0$  таким образом, что  $\hbar\omega_0 + \hbar\omega_n =$

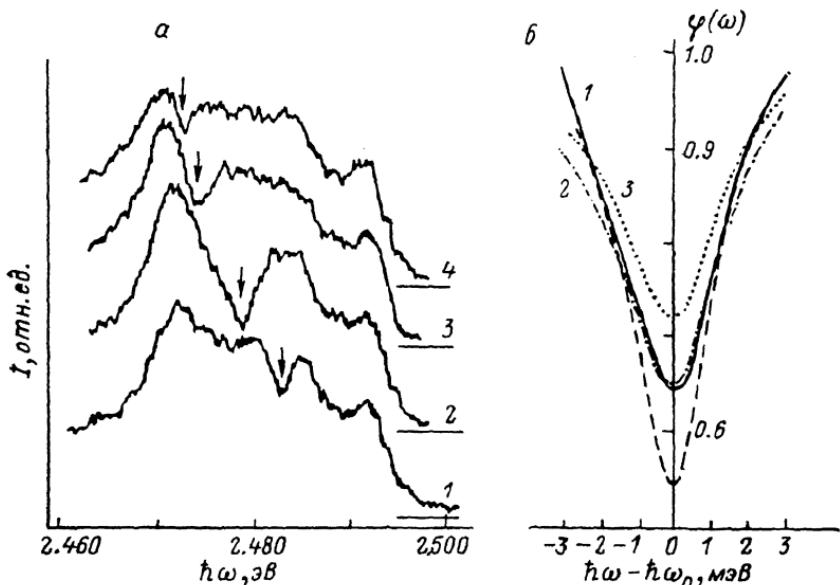


Рис. 1. Спектры люминесценции кристалла  $2H\text{-PbI}_2$  (а) и подгонка расчетной зависимости  $\varphi(\omega)$  к измеренной экспериментально (б).

а: 1 —  $\hbar\omega_0 = 2.5088$ , 2 — 2.5129, 3 — 2.5174, 4 — 2.5188. Стрелками отмечены провалы резонансного ДФП; б: 1 — эксперимент, 2—4 — расчет. 2 — кривая, наилучшим образом описывающая экспериментальную зависимость.  $f_M = 400$  (2, 4) и 300 (1).  $\Gamma = 3 \cdot 10^{-3}$  (2, 3) и  $2 \cdot 10^{-3}$  эВ (4).

$=4.9919 \pm 0.0004$  эВ. Ранее в работе [5] мы сообщали о наблюдении в  $2H\text{-PbI}_2$  аналогичных провалов, хотя и несколько менее выраженных, и показали, что они обусловлены процессами двухфотонного образования биэкситонов с участием поляритона верхней ветви  $\hbar\omega_0$ , создаваемого излучением возбуждающего лазера, и поляритона нижней ветви  $\hbar\omega_n$ , изымаемого из сплошного люминесцентного спектра. Сумма  $\hbar\omega_0 + \hbar\omega_n$  дает энергию образования биэкситона с волновым вектором  $\mathbf{k}_0 + \mathbf{k}_n$ . Учет дисперсии биэкситона  $E_M(k) = E_M(0) + k^2 \hbar^2 / 2M$  приводит лишь к небольшой поправке к непосредственно измеряемой величине  $\hbar\omega_0 + \hbar\omega_n$ , значительно меньшей, чем экспериментальная погрешность. Таким образом, можно считать, что 4.9919 эВ является энергией образования биэкситона с  $k=0$ . Если принять энергию поперечного экситона  $E_T = 2.4982 \text{ эВ}$ , то для энергии связи биэкситона  $E_M^0 = 2E_T - E_M(0)$  получаем значение 4.5 мэВ, т. е. вполне разумную величину в пределах, предсказываемых теоретическими расчетами энергии связи биэкситона [6, 7]. Этот факт подтверждает справедливость нашей интерпретации провалов ДФП.

Приведенный здесь и в работах [1, 5] анализ касается только кинематических свойств ДФП и не позволяет определить вероятность процесса, связанную с силой осциллятора экситон-биэкситонного перехода. На-

сколько нам известно, экспериментальное определение вероятности ДФП с образованием биэкситона ранее выполнялось для кристаллов CuCl, например, в работе [8] с применением двух независимых внешних источников — лазерного возбуждения и источника зондирующего излучения с широким спектром. Исследуемый нами вариант ДФП с участием собственной люминесценции несколько сложнее для численного анализа.

Полагаем, что возбуждающее излучение направлено в глубь кристалла перпендикулярно поверхности, а зондирующее рекомбинационное излучение распространяется в противоположном направлении. Ослабление зондирующего излучения происходит вследствие резонансного ДФП, а его приращение — за счет преобразования поглощаемого возбуждающего из-

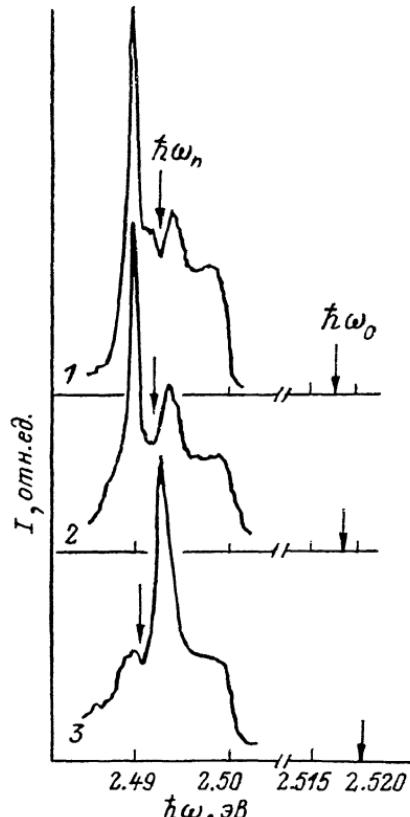


Рис. 2. Спектры люминесценции кристалла 4H-PbI<sub>2</sub>.

$\hbar\omega_0$ , эВ: 1 — 2.5180, 2 — 5185, 3 — 2.5201. Стрелки отмечены спектральные положения проводов ДФП и линии возбуждающего лазера.

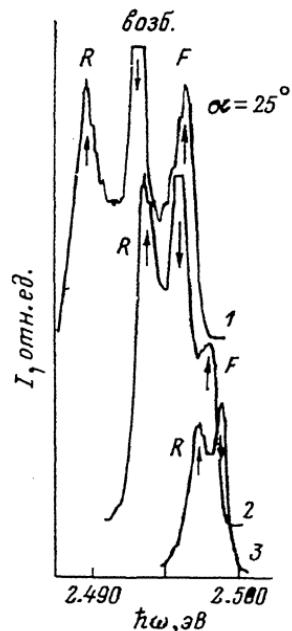


Рис. 3. Спектры рассеяния кристалла 4H-PbI<sub>2</sub>.

$\hbar\omega_0$ , эВ: 1 — 2.4930, 2 — 2.4959, 3 — 2.4987. ↑ — линии рассеяния RF; ↓ — линии возбуждающего лазера. Конфигурация рассеяния — на рис. 4 (вставка 1).

лучения в люминесценцию. Кроме того, полагаем, что поглощение возбуждающего излучения линейно. Линейным поглощением зондирующего излучения пренебрегаем. При перечисленных предположениях нами было получено следующее выражение для формы линии ДФП  $\varphi(\omega)$  (отношение интенсивности зондирующего излучения на частоте  $\omega$  при отсутствии ДФП к его интенсивности при наличии ДФП):

$$\varphi(\omega) = \frac{K_1(\omega_0)}{K_2(\omega, \omega_0) I_0(\omega_0)} \left\{ 1 - \exp \left[ - \frac{K_2(\omega, \omega_0) I_0(\omega_0)}{K_1(\omega_0)} \right] \right\}. \quad (1)$$

Здесь  $K_1$  — линейный коэффициент поглощения возбуждающего излучения,  $K_2$  — коэффициент двухфотонного поглощения,  $I_0$  — плотность мощности возбуждения. Выражение для коэффициента ДФП, полученное во втором порядке теории возмущений [8], имеет вид

$$K_2(\omega, \omega_0) \simeq \frac{\pi r_e^2 c^2 P^2 \hbar^3}{2 \epsilon_0 a_B^3 E_{Xj}^2} f_M \frac{\Gamma}{(E_M - \hbar\omega - \hbar\omega_0)^2 + \Gamma^2/4} \left\{ \frac{1}{E - \hbar\omega} + \frac{1}{E - \hbar\omega_0} \right\}^2. \quad (2)$$

Здесь учтена связь между Фурье-образом относительного движения экситонов в биэкситоне и силами осциллятора экситонного  $f_x$  и экситон-биэкситонного переходов  $f_m$  [9]. Кроме того,  $f_x$  выражена через приведенный матричный элемент перехода между состояниями зоны проводимости и валентной зоны  $P$  [10]. В выражении (2)  $\Gamma$  — ширина линии двухфотонного перехода,  $a_B$  — боровский радиус экситона,  $\epsilon_B$  — фоновая диэлектрическая проницаемость.

Величины  $K_1$  для данного кристалла были измерены нами экспериментально. Полагаем  $P^2=25$  эВ,  $E_x=(E_T+E_L)/2=2.5011$  эВ,  $a_B=23 \text{ \AA}$  [10],  $\epsilon_B=10$  [3]. Подгонка формы и глубины провала ДФП, описываемого выражениями (1), (2), к измеренной экспериментально осуществлялась путем подбора параметров  $f_m$  и  $\Gamma$  для четырех значений  $\omega_0$ , приведенных в подписи к рис. 1, а. Результаты измерений и расчетов сопоставлены на рис. 1, б для  $\hbar\omega_0=2.5129$  эВ. Ввиду того что в вычислениях использованы значения параметров  $a_B$ ,  $P^2$ , взятые из литературы, погрешности которых неизвестны, а также вследствие значительного разброса полученных значений  $f_m$  для различных  $\omega_0$ , точность определения  $f_m$  оказывается невысокой, и окончательная величина  $f_m \sim 10^2 \div 10^3$  имеет только значение оценки.

Рассмотрим теперь результаты измерений ДФП в кристаллах 4Н-РbI<sub>2</sub>. В целом схема эксперимента соответствовала описанной выше,  $I_0=200$  кВт/см<sup>2</sup>,  $T=4.2$  К, толщина кристаллической пластинки 100 мкм. Спектры люминесценции, измеренные при различных  $\hbar\omega_0$ , показаны на рис. 2. Как и в предыдущем случае, в спектрах люминесценции формируются провалы ДФП, спектральное положение которых  $\hbar\omega_n$  зависит от  $\hbar\omega_0$ . Наилучшая аппроксимация экспериментальной зависимости  $\hbar\omega_n$  от  $\hbar\omega_0$  достигается выражением  $\hbar\omega_0+\hbar\omega_n=5.0108 \pm 0.0004$  эВ. Если предположить, что величина 5.0108 эВ представляет собой энергию образования биэкситона, то энергия связи биэкситона  $E_M^b=2E_T-E_M(0)$  составляет 5 мэВ, т. е. вполне разумную величину в соответствии с теоретическими расчетами [6, 7]. Этот факт позволяет сделать вывод, что наблюдаемые провалы перепоглощения действительно обусловлены процессом двухфотонного создания биэкситона с энергией образования  $E_M(0)=5.0108$  эВ. Линейная зависимость  $\hbar\omega_n$  от  $\hbar\omega_0$  с коэффициентом  $-1$  указывает, как и в случае 2Н-политипа, на преимущественное участие ВПВ в процессе ДФП в условиях данного эксперимента.

Наряду с резонансным ДФП существование биэкситона проявляется и в рассеянии света через промежуточное биэкситонное состояние (ГКР). В процессе ГКР виртуальный биэкситон, созданный двумя поляритонами возбуждающего излучения, распадается без промежуточной релаксации на два поляритона неодинаковой энергии. При этом сохраняется энергия

$$2\hbar\omega_0 = \hbar\omega_R + \hbar\omega_F \quad (3)$$

и волновой вектор

$$2k_0 = k_R + k_F. \quad (4)$$

Кроме того,  $\hbar\omega_i$  и  $k_i$  связаны поляритонным дисперсионным уравнением

$$c^2 k_i^2 / \omega_i^2 = \epsilon_b [1 + (E_L^2 - E_T^2) / (E_T^2 + E_T k_i^2 \hbar^2 / M_x - \hbar^2 \omega_i^2)] \quad (5)$$

( $i=O, R, F$ ). Здесь индексы «F» относятся к экситоноподобному рассеянному поляритону, а «R» — к фотоноподобному. Анализ измеренной зависимости  $\hbar\omega_R$  и  $\hbar\omega_F$  от  $\hbar\omega_0$  при различных взаимных ориентациях  $k_R$ ,  $k_F$ ,  $k_0$  и оси кристалла на основе соотношений (3) — (5) позволяет определить параметры поляритонной дисперсии. Для этого нами были выполнены измерения по методике, сходной с описанной выше;  $\hbar\omega_0$  принадлежала области прозрачного кристалла ниже энергии связанного экситона (2.503 эВ) вблизи биэкситонного резонанса  $E_M/2=2.5054$  эВ.

Плотность мощности возбуждения равнялась 500 кВт/см<sup>2</sup>. Толщина монокристаллического образца 4H-PbI<sub>2</sub> составляла 200 мкм.

На рис. 3 приведены спектры, полученные в конфигурации рассеяния «вперед» под углом  $\alpha=25^\circ$  к оси кристалла для различных  $\hbar\omega_0$ . В спектрах доминируют линии рассеяния, обозначенные нами  $R$  и  $F$ . Ряд свойств этих линий, таких как нелинейная зависимость их интенсивности от  $I_0$ , резонансное возрастание их амплитуды относительно амплитуды лазерной линии при приближении  $\hbar\omega_0$  к  $E_M/2$ , зависимость энергетического интервала между  $\hbar\omega_R$ ,  $\hbar\omega_F$  и  $\hbar\omega_0$  от  $\hbar\omega_0$  и от угла наблюдения, позволяет отнести их к процессу ГКР через промежуточное биэкситонное состояние.

На рис. 4 показаны измеренные зависимости энергии рассеянных поляритонов от  $\hbar\omega_0$  и соответствующие им экспериментальные конфигура-

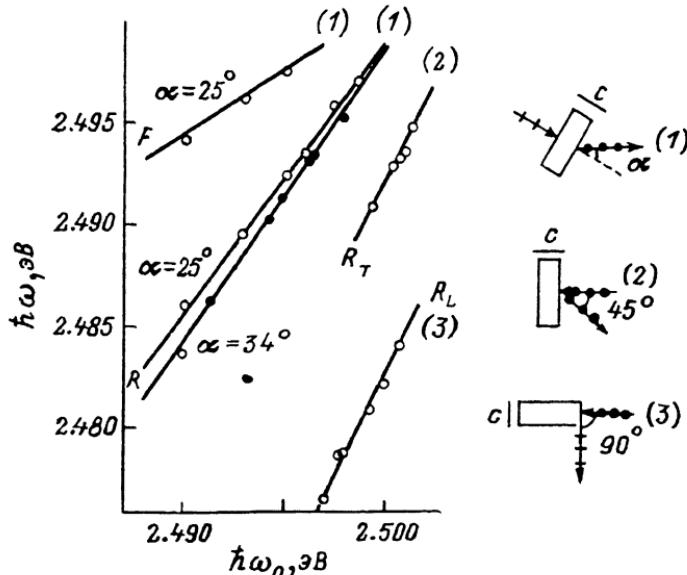


Рис. 4. Зависимости спектрального положения линий ГКР от  $\hbar\omega_0$ .

Точки — эксперимент, сплошные линии — расчет. 1—3 — конфигурации и соответствующие им зависимости. 1 — рассеяние «вперед» под углами  $\alpha=25$  и  $34^\circ$  и полученные в этой конфигурации зависимости энергетического положения линий  $R$  и  $F$  от  $\hbar\omega_0$ ; 2 — рассеяние «назад». Регистрируется только линия  $R_T$ , так как антистоксов поляритон отдачи образуется на экситоноподобной части НПВ, а направление его волнового вектора противоположно направлению наблюдения; 3 — рассеяние «вбок». Регистрируется линия  $R_L$ , соответствующая образованию продольного экситона отдачи.

ции, выбранные таким образом, чтобы устранить усложнения, связанные с анизотропией кристалла. В геометриях 1, 2 рассеянные поляритоны принадлежат НПВ. В геометрии 3 наблюдался процесс ГКР с образованием продольного поляритона отдачи, запрещенный в других конфигурациях «геометрическим фактором» [11]. Сплошными линиями показаны результаты вычислений на основе выражений (3)–(5), в которых достигнуто наилучшее согласие с экспериментом. Получены следующие значения подгоночных параметров:  $E_T=2.5079 \pm 0.0005$ ,  $E_L=2.5170 \pm 0.0005$  эВ,  $\epsilon_{bL}=6 \pm 1$ . В расчетах использовано значение трансляционной массы экситона, приведенное в работе [12],  $M_x=(1.0 \pm 0.2) m_0$ . Для сравнения приведем данные работы [12], где были выполнены измерения по методу интерференции в тонких пластинках:  $E_T=2.5083$ ,  $E_L=2.5149$  эВ,  $\epsilon_{bL}=-5.15$ , продольно-поперечное расщепление  $\Delta E_{LT}=6.6$  мэВ. В [10] для  $\Delta E_{LT}$  приводится значение 8 мэВ. По результатам наших измерений,  $\Delta E_{LT}=9 \pm 1$  мэВ. Таким образом, имеются некоторые расхождения с результатами измерений других авторов, которые, по всей видимости, присущи самому методу [13].

Известно, что наряду с ДФП и ГКР участие биэкситона в качестве промежуточного состояния возможно также и для такого перспективного, с точки зрения практического применения, процесса, как вырожденное

ЧВС [11]. Вырожденное ЧВС с участием биэкситонов наблюдалось в CuCl и CdS [14]. Сущность указанного явления состоит в том, что при рекомбинации в кубически нелинейной среде двух интенсивных пучков накачки  $p_1$  и  $p_2$  и зондирующего пучка  $t$  с одинаковой частотой  $\omega$  возникает четвертый сигнальный пучок  $s$  на той же частоте, связанный с  $p_1$ ,  $p_2$  и  $t$  условием фазового синхронизма

$$\mathbf{k}_{p_1} + \mathbf{k}_{p_2} = \mathbf{k}_t + \mathbf{k}_s. \quad (6)$$

Здесь  $\mathbf{k}$  — волновые векторы участвующих в процессе поляритонов. В наших экспериментах использовался лишь один пучок накачки  $p$ , т. е.  $p_1$  и  $p_2$  совпадали (рис. 5, а). Условие (6) здесь принимает вид

$$2\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_t + \mathbf{k}_s. \quad (7)$$

Строгое выполнение условия (7) возможно лишь при нулевом угле между  $p$  и  $t$ . Однако фазовое рассогласование достигает минимальной

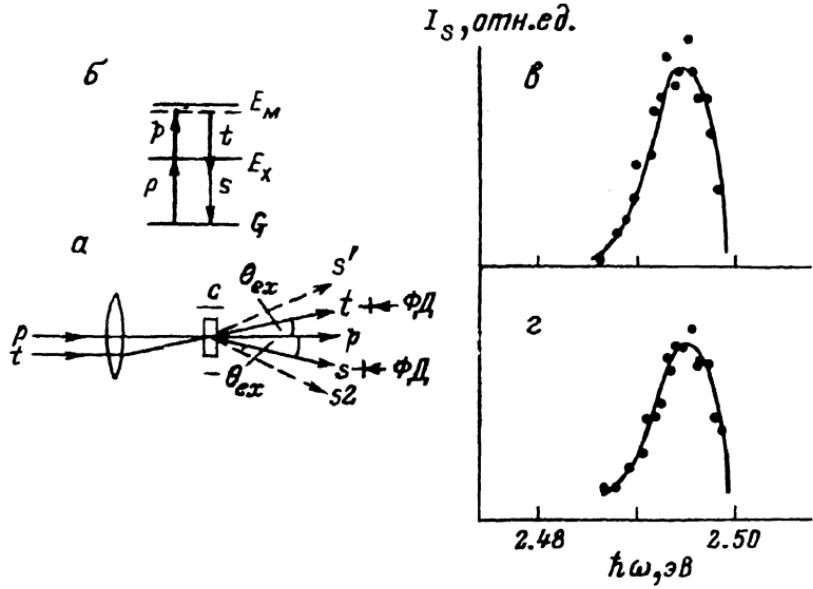


Рис. 5. Вырожденное ЧВС в кристалле 4Н-РbI<sub>2</sub>.

а — экспериментальная конфигурация; б — энергетическая диаграмма ЧВС через виртуальное биэкситонное состояние; в, г — зависимости интенсивности сигнального пучка  $s$  от  $\hbar\omega$  для одинаковых и ортогональных поляризаций пучков  $p$  и  $t$  соответственно.

величины  $|\Delta\mathbf{k}| = |2\mathbf{k}_p - \mathbf{k}_t - \mathbf{k}_s| = \theta_{ex}^2 \omega / nc$  для направления  $\mathbf{k}_s$ , симметричного к  $\mathbf{k}_t$  относительно  $\mathbf{k}_p$  [14]. Здесь  $\theta_{ex}$  — угол между  $\mathbf{k}_p$  и  $\mathbf{k}_t$  вне кристалла,  $n \approx \sqrt{\epsilon_b} [1 + (E_L - E_T^2)/(E_T^2 - \hbar^2\omega^2)]$  — коэффициент преломления кристалла вблизи экситонного резонанса. Эффективность процесса ЧВС  $p$  определяется выражением  $\rho = \sin^2(\Delta k l/2)/(\Delta k l/2)^2$  [15], где  $l$  — вектор толщины образца. При выбранном небольшом угле  $\theta_{ex} = 3^\circ$ , необходимом для пространственной дискриминации пучков,  $l = 150$  мкм и  $\hbar\omega = 2.494$  эВ, эффективность составляет  $\sim 0.8$ . Плотность возбуждения в данном эксперименте  $I_p = 800$ ,  $I_t = 40$  кВт/см<sup>2</sup>. Расщепленный пучок перестраиваемого лазера сводился в одну точку на поверхности монокристаллического образца 4Н-РbI<sub>2</sub> толщиной 150 мкм, сколотого перпендикулярно кристаллической оси. Температура образца 4.2 К. Измерения проводились как при совпадающих, так и при ортогональных поляризациях пучков  $p$  и  $t$ . Выходящие из кристалла пучки регистрировались затем с помощью фотокамеры либо фотодиода.

На рис. 6 представлены снимки, полученные для совпадающих поляризаций пучков  $p$  и  $t$  при различных временах экспозиции. Кроме прошедших через кристалл пучков  $p$  и  $t$ , наблюдался интенсивный сигнальный

пучок  $s$ , а также  $s'$ ,  $s2$ ,  $s2'$  и т. д. более высоких порядков. На рис. 5, в показана зависимость интенсивности сигнала ЧВС  $s$  от  $\hbar\omega$  для этого случая. Наблюдается широкий максимум при 2.494 эВ. Максимальное отношение  $I_s/I_t$  составляло 0.3.

Рассмотрим более подробно механизм генерации сигнала ЧВС. В использованной экспериментальной конфигурации, когда световые пучки направлены под небольшим углом к оси  $c$ , можно пренебречь влиянием анизотропии кристалла. Воспользуемся поэтому выражением для нели-

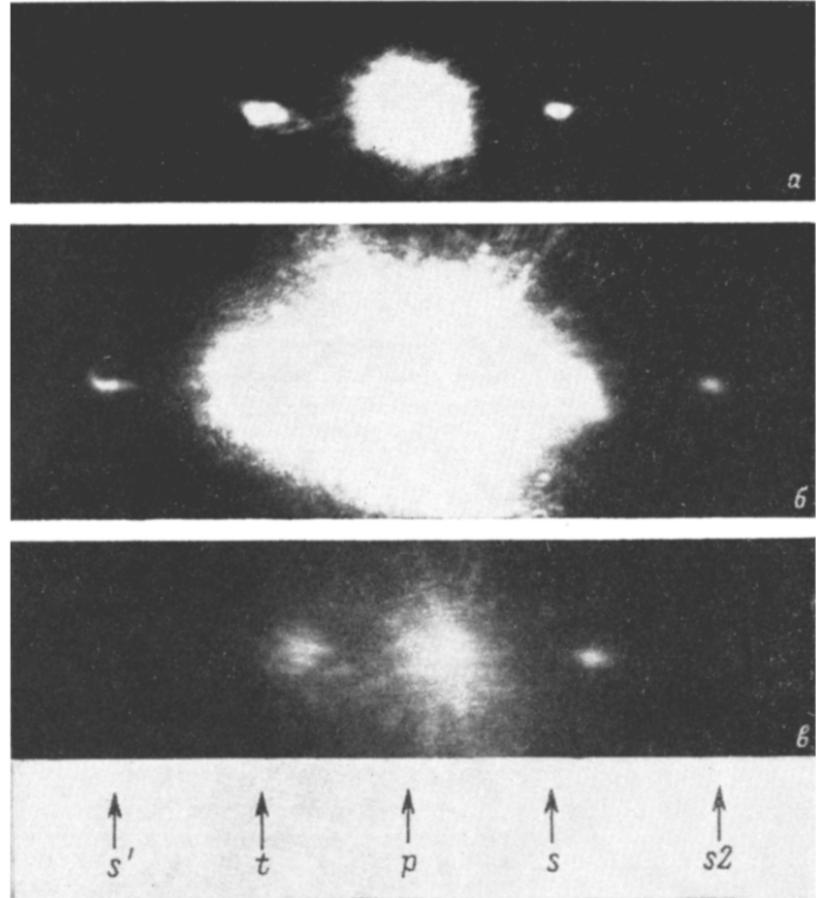


Рис. 6. Вырождение ЧВС в 4Н-РbI<sub>2</sub>. Снимки световых пучков, выходящих из кристалла.

*a, б* — при совпадающих поляризациях пучков  $p$  и  $t$ , но экспозиция для *б* больше, из-за чего пучки  $p$ ,  $t$ ,  $s$  не разрешаются; *в* — ортогональных поляризациях пучков  $p$  и  $t$ .

нейной поляризации сигнала ЧВС в изотропных средах, приведенным в работе [16]

$$P_s \sim A (E_p E_t^*) E_p + C (E_p E_p) E_t^*. \quad (8)$$

Здесь  $A$ ,  $C$  — константы (для анизотропной среды — тензоры) кубической восприимчивости;  $E$  — электрические поля взаимодействующих волн. Первый член в (8) ответствен за голограммический механизм ЧВС в однофотонных средах и физически описывает дифракцию пучка  $p$  на решетке, возникшей вследствие интерференции пучков  $p$  и  $t$ . Второй член описывает вклад в ЧВС однофотонных процессов. При этом нелинейная поляризация сигнальной волны возникает в результате взаимодействия двухфотонного когерентного возбуждения с частотой  $2\omega$ , создаваемого пучком  $p$ , и зондирующего пучка. Поскольку эксперименты по ДФП и ГКР через биэкситонное состояние указывают на важную роль биэкситонов в формировании

оптических свойств кристаллов  $4H\text{-PbI}_2$  в области энергий непосредственно ниже энергии связанныго экситона, то и в данном случае, очевидно, следует учитывать участие биэкситонов. Энергетическая диаграмма, описывающая ЧВС через виртуальное биэкситонное состояние, приведена на рис. 5, б. В отличие от ГКР в этом случае распад виртуального биэкситона, создаваемого двумя квантами пучка накачки  $p$ , на два поляритона происходит не спонтанно, а индуцируется внешним зондирующим излучением пучка  $t$ . Высокой эффективности процесса способствуют промежуточные резонансы на экситонном уровне и гигантская сила осциллятора экситон-биэкситонного перехода.

Для того чтобы выделить вклад двухфотонных процессов, описываемых вторым членом в (8), мы внесли некоторое изменение в схему эксперимента, установив ортогональные поляризации пучков  $p$  и  $t$ . Как следует из (8), нелинейная поляризация в этом случае будет определяться лишь вторым членом  $C(E_p E_p) E_t^*$ , т. е. двухфотонными процессами. Генерация сигнала ЧВС наблюдалась и для ортогональных поляризаций  $p$  и  $t$  (рис. 6). Зависимость интенсивности сигнального пучка  $s$  от  $\omega$  для этого случая приведена на рис. 5, г. Вид зависимости качественно такой же, как и для совпадающих поляризаций  $p$  и  $t$ . Генерация сигнала с коротковолновой стороны ограничена, по-видимому, ростом линейного поглощения на связанным экситоне, а с длинноволновой — уходом от промежуточных экситонных резонансов и двухфотонного резонанса на биэкситоне. Таким образом, можно утверждать, что генерация сигнала ЧВС в  $4H\text{-PbI}_2$  в большей степени обусловлена двухфотонными процессами при участии биэкситонного состояния. В пользу предложенного механизма свидетельствует также то обстоятельство, что и ЧВС, и родственный ему процесс ГКР наблюдаются в одном и том же диапазоне частот и плотностей мощности возбуждения. На возможность индуцирования распада виртуального биэкситона внешним излучением пучка  $t$  указывает также факт эффективного стимулирования процесса ГКР, проявляющийся в наличии порога возбуждения ( $\sim 350$  кВт/см $^2$ ) и большой интенсивности линий рассеяния. Отметим, что наряду с кубической восприимчивостью заметных величин достигают также нелинейные восприимчивости высших порядков ( $2n+1$ ). Таким восприимчивостям соответствует наблюдаемая генерация сигнальных пучков в направлениях  $k_s^n = k_p + n(k_p - k_t)$  и  $k_s^{n'} = k_t + n'(k_t - k_p)$  [16].

Таким образом, измерения резонансного ДФП показали, что биэкситон в кристаллах  $\text{PbI}_2$  является относительно слабосвязанным и нестабильным состоянием. В то же время благодаря гигантской силе осциллятора экситон-биэкситонного перехода биэкситоны играют большую роль в формировании нелинейных свойств этого кристалла в резонансной поляритонной области.

#### Список литературы

- [1] Levi R., Bivas A., Hönerlage B., Lu Q. H. // Physica. 1981. V. 105B. N 1. P. 78—82.
- [2] Schrey H., Lyssenko V. G., Klingshirn C. // Sol. St. Comm. 1979. V. 32. N 10. P. 897—899.
- [3] Goto T. // J. Phys. Soc. Jap. 1982. V. 51. N 1. P. 3—4.
- [4] Бродин М. С., Кадан В. Н., Мацко М. Г., Рыбак В. М. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 10. С. 3112—3117.
- [5] Бродин М. С., Кадан В. Н., Мацко М. Г. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 3. С. 776—780.
- [6] Huang W. T. // Phys. St. Sol. (b). 1973. V. 60. N 1. P. 309—317.
- [7] Akimoto O., Hanamura E., Bobrysheva A. I. // Phys. St. Sol. (b). 1966. V. 16. N 1. P. 337—348.
- [8] Vu Duy Phach, Bivas A., Hönerlage B., Grun J. B. // Phys. St. Sol. (b). 1977. V. 84. N 2. P. 731—740.
- [9] Рашба Э. И. // ФТП. 1974. Т. 8. № 7. С. 1241—1256.
- [10] Кардана М., Гюнтеродт Г., Дрессельхаус М. и др. // Рассеяние света в твердых телах. Вып. III. Результаты последних исследований. М., 1985. 311 с.
- [11] Кулаковский В. Д., Лысенко В. Г., Тимофеев В. Б. // УФН. 1985. Т. 147. № 1. С. 3—47.

- [12] Hayashi T. // J. Phys. Soc. Jap. 1986. V. 55. N 6. P. 2043—2052.
- [13] Рамба Э. И., Стерджа М. Д. Экситоны. М., 1985. 616 с.
- [14] Maruani A., Chemla D. S. // Phys. Rev. B. 1981. V. 23. N 2. P. 841—860.
- [15] Maruani A., Oudar J. L., Batifol E., Chemla D. S. // Phys. Rev. Lett. 1978. V. 41. N 20. P. 1372—1375.
- [16] Steele D. G., Lam J. E. // Phys. Rev. Lett. 1979. V. 43. N 21. P. 1588—1591.

Институт физики АН УССР  
Киев

Поступило в Редакцию  
11 мая 1987 г.  
В окончательной редакции  
2 февраля 1989 г.

---