

УДК 621.315.592

## ВЛИЯНИЕ НЕЛИНЕЙНОЙ РЕФРАКЦИИ, ПОГЛОЩЕНИЯ СВОБОДНЫХ НОСИТЕЛЕЙ И МНОГОКРАТНОГО ОТРАЖЕНИЯ НА ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТА ДВУХФОТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ В АРСЕНИДЕ ГАЛЛИЯ

А. А. Бугаев, Т. Ю. Дунаева, В. А. Лукошкин

Представлены результаты анализа упрощающих предположений, применяемых к системе дифференциальных уравнений, которая описывает распространение светового импульса в среде с двухфотонным поглощением на примере арсенида галлия. Показано, что теоретическое обоснование их использования является слабо аргументированным и противоречивым и может служить причиной представленного в публикациях спектра значений коэффициента двухфотонного поглощения (КДП). Получены экспериментальные доказательства пренебрежимости влияния нелинейной рефракции, поглощения свободных носителей и многократного отражения, которые свидетельствуют о том, что неопределенность коэффициента двухфотонного поглощения связана с наличием  $EL2$  уровней.

Двухфотонное поглощение, сопровождающее распространение интенсивных световых импульсов в объеме полупроводника, продолжает оставаться объектом широкого круга исследований [1, 2]. Интерес к этому процессу обусловлен прежде всего возможностями его практического использования, например, для усиления спонтанной эмиссии в больших объемах лазерно-активных сред с целью генерации коротких световых импульсов на других частотах [3]. Наряду с этим двухфотонное поглощение, осуществляемое на нелинейной восприимчивости третьего порядка, вызывает изменение диэлектрической проницаемости среды на частоте возбуждающего импульса и приводит тем самым к эффекту самовоздействия. Это позволяет рассматривать двухфотонное поглощение как перспективный механизм нелинейности для оптических систем обращения волнового фронта [4] и устройств преобразования частотного спектра ультракоротких световых импульсов [5].

С другой стороны, полученные в экспериментах значения коэффициента двухфотонного поглощения, например, для GaAs составляют диапазон от 15 [6] до 5600 см/ГВт [7], что предположительно свидетельствует о некорректности, допускаемой либо при выполнении экспериментов, либо при теоретическом описании процесса двухфотонного поглощения. Погрешность эксперимента, связанная, как правило, с неконтролируемой флуктуацией пространственно-временной формы возбуждающего импульса, тщательно учитывалась авторами [1, 8], которые определили воспроизводимое значение КДП в интервале 20—45 см/ГВт. При этом роль нелинейной рефракции, поглощения свободных носителей и многократного отражения оценивалась на основе полуколичественных соотношений, использование которых часто имеет противоречивый характер (см., например, [6] о необходимости учета многократного отражения и [2] об отсутствии такой необходимости).

Цель настоящей работы — исследовалась в экспериментальном определении влияния и величины вклада указанных факторов в процесс двухфотонного поглощения пикосекундного импульса в GaAs.

Распространение монохроматической электромагнитной волны  $E(r, t)$  в среде с нелинейной восприимчивостью третьего порядка  $\chi_{ijkl}^{(3)}$  и диэлектрической проницаемостью  $\epsilon$ , содержащей вклад от свободных носителей с концентрацией  $N$  в виде  $\epsilon = (\eta + ik)^2 = \epsilon' + i\epsilon'' - Ne^2/m^*$  ( $\omega^2 + i\omega/\tau$ ), может быть описано с помощью волнового уравнения, которое для одномерного случая в приближении медленно меняющихся амплитуд имеет вид

$$-i \left( \frac{2\omega_0\eta}{c} \right) \frac{dE(r)}{dr} + \frac{\omega_0^2}{c^2} (k^2 - 2i\eta k) E(r) = \frac{4\pi\omega_0^3}{c^2} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_0) E_j E_k E_l^*, \quad (1)$$

где  $m^*$  — эффективная масса носителей;  $\tau$  — время затухания диссипативных процессов в плазме свободных носителей;  $\eta, k$  — показатель преломления и коэффициент экстинкции; \* — символ комплексно-сопряженной величины. Записывая комплексную амплитуду  $E(r) = |E(r)| \times \exp(i\Phi(r))$ , легко получить дифференциальное уравнение, описывающее изменение интенсивности  $I = c\eta |E|^2 / 8\pi$  по мере распространения в объеме полупроводника

$$\frac{d}{dr} I(r, t) = -\alpha I(r, t) - \sigma N(r, t) I(r, t) - \beta I^2(r, t), \quad (2)$$

где  $\alpha = 2\omega_0 k / c$  — коэффициент линейного поглощения,  $\sigma$  — поперечное сечение поглощения свободных носителей,  $\beta = c \operatorname{Im} \chi^{(3)}(\omega_0)$  — коэффициент двухфотонного поглощения,  $c$  — константа.

Уравнение для фазового набега  $\Phi(r, t)$  здесь не рассматривается, поскольку приближение, использованное для получения (2), не включает явления нелинейной рефракции, которое для GaAs соответствует комбинации самофокусировки (за счет  $\operatorname{Re} \chi^{(3)}(\omega_0)$  [8]) и дефокусировки (за счет генерации свободных носителей [10]).

Уравнение (2) совместно с уравнением, описывающим кинетику генерации свободных носителей

$$\frac{dN(r, t)}{dt} = \frac{\beta I^2(r, t)}{2\hbar\omega} - \frac{N(r, t)}{\tau_r} - D \frac{d^2 N(r, t)}{dr^2} \quad (3)$$

( $\tau_r = B^{-1}N^{-1}$  — время излучательной рекомбинации,  $B = 2 \cdot 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ ,  $D = 20 \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}$  — коэффициент амбиполярной диффузии), составляет теоретическую основу для определения величины  $\beta$  путем измерения зависимости пропускания  $T$  образца от интенсивности возбуждающего импульса. Типичным приемом при этом является численная подгонка решения системы (2)–(3) относительно пропускания, полученного с использованием ряда упрощающих предположений, к соответствующим результатам эксперимента. К числу этих упрощений относится пренебрежение следующими процессами: 1) диффузия и рекомбинация, 2) поглощение свободных носителей, 3) нелинейная рефракция, 4) многократное отражение. В результате этого система уравнений (2)–(3) позволяет получить решение для пропускания  $T$  образца толщиной  $d$ , в случае, когда световой импульс имеет гауссову пространственно-временную форму [8],

$$T = \frac{2\alpha}{\beta} \frac{\exp(-ad)}{I_0 \pi^{1/2}} \frac{1-R}{1 - \exp(-ad)} \int_0^\infty \ln \left[ 1 + \frac{\beta I_0}{\alpha} (1-R)(1 - \exp(-ad)) \times \right. \\ \left. \times \exp(-x^2) \right] dx, \quad (4)$$

где  $I_0$  — пиковое значение интенсивности на оси распространения возбуждающего импульса,  $R$  — коэффициент отражения GaAs. Понятно, что при условии адекватности описания процесса двухфотонного поглощения системой (2)–(3) степень соответствия решения (4) результатам

эксперимента целиком определяется корректностью сделанных выше предположений.

Если пренебрежение диффузией и рекомбинацией может быть достаточно убедительно аргументировано как расчетами, так и соответствующими экспериментами, то условия выполнения остальных предположений («2»—«4») представляются менее очевидными.

Действительно, для значений концентрации фотовозбужденных носителей, меньших  $5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ , и характерных размеров возбуждаемой области  $\lambda$ , не меньших  $10^{-2} \text{ см}$ , времена диффузии  $\tau_D = \lambda^2 / \pi D = 1.6 \cdot 10^{-8} \text{ с}$  и рекомбинации  $\tau_r = B^{-1} N^{-1} = 10^{-10} \text{ с}$  значительно превышают используемую в экспериментах длительность пикосекундных импульсов  $\tau_p \leq 3 \times 10^{-11} \text{ с}$  и позволяют тем самым с уверенностью пренебречь указанными процессами.

Условие, при котором поглощение свободных носителей пренебрежимо мало по сравнению с двухфотонным поглощением, было получено в [8] и требует, чтобы интенсивность возбуждающего импульса пикосекундной длительности  $\tau_p$  была много меньше критического значения  $I_{cr} = 2\hbar\omega / \sigma_p (1-R) = 3.6 \cdot 10^9 \text{ Вт/см}^2$ . Однако это условие является весьма приближенным, поскольку при его выводе не учитывались необходимость пространственного интегрирования возбуждающего импульса [1] и возможные члены уравнения (2), отвечающие многократному отражению и нелинейной рефракции. Следствием этого являются противоречивые заключения экспериментов, которые, с одной стороны, отвергают влияние поглощения свободных носителей GaAs при интенсивности возбуждения вплоть до порога плавления  $3 \cdot 10^{10} \text{ Вт/см}^2$  [6], а с другой стороны, выдвигают ограничение по интенсивности [1, 8].

Рассмотрим далее влияние многократного отражения на характер двухфотонного поглощения светового импульса в объеме полупроводника. Здесь также отсутствует единая точка зрения на необходимость учета этого эффекта [1, 6, 11]. При этом влияние многократного отражения рассматривается как результат простого суммирования по интенсивности волн, отраженных от входной и выходной поверхностей образца. Однако, на наш взгляд, это влияние проявляется прежде всего в эффекте когерентного суммирования, который обеспечивает немонотонное распределение интенсивности накачки в объеме образца. В самом деле, наличие хотя бы одной отраженной волны приводит к тому, что поле  $\vec{E}(r)$  возбуждающего импульса в пределах длины когерентности приобретает вид

$$\vec{E}(r) = |\vec{E}_1(r)| \exp(i\Phi(r)) + |\vec{E}_2(r)| \exp(-i\Phi(r)), \quad |\vec{E}_2(d)| = R_a |\vec{E}_1(d)|,$$

где  $R_a$  — коэффициент отражения по амплитуде. Подставляя это выражение в (1), находим вместо (2) уравнения для распространения интенсивности импульса

$$\frac{dI_1(r, t)}{dr} = -[a + \sigma N(r, t)] I_1(r, t) - \beta \left[ 1 + \left( \frac{I_2(r, t)}{I_1(r, t)} \right)^{1/2} \cos 2\Phi(r) \right]^3 I_1^3(r, t),$$

$$dI_2(r, t)/dr = -[a + \sigma N(r, t)] I_2(r, t), \quad (5)$$

где  $\beta$  — коэффициент двухфотонного поглощения, определенный аналогично (2). Отсюда видно, что появление пространственно-осциллирующего множителя в третьей степени перед членом двухфотонного поглощения в (5), который означает, что возбуждение объема полупроводника по крайней мере вблизи выходной поверхности производится системой стоячих интерференционных волн, приводит к увеличению эффективности процесса двухфотонного поглощения. В самом деле, усредняя (5) в пространственном интервале  $r_0$ , превышающем период осцилляций, мы получим эффективное значение  $\beta$ , которое больше истинного  $\beta$  на величину

$$\langle [1 + (I_2(r, t)/I_1(r, t))^{1/2} \cos 2\Phi(r)]^3 \rangle. \quad \text{Здесь } \langle \dots \rangle = \frac{1}{2r_0} \int_{-r_0}^{r_0} (\dots) dr.$$

Полученный вывод хорошо коррелирует с результатами анализа возбуждения нелинейного процесса шумовой накачкой [12], согласно которому статистический выигрыш шумовой накачки по сравнению с гармоническим возбуждением для гауссова шума с рэлеевским распределением амплитуды равен  $n!$  (где  $n$  — степень нелинейности процесса). Экспериментальное подтверждение этих результатов для случая шумовой накачки нелинейного поглощения в Si и GaAs приведено в [13, 14]. Таким образом, видно, что характер влияния многократного отражения достаточно сложен и не позволяет выполнить однозначную численную оценку его величины.

Подобное заключение может быть сделано и в отношении нелинейной рефракции, которую обеспечивают (с разными знаками) реальная часть нелинейной восприимчивости  $\text{Re} \chi^{(3)}(\omega_0)$ , непараболичность зоны проводимости и фотовозбуждение свободных носителей. Для краткости изложения ограничимся лишь сопоставлением выводов работы [8] о малой величине вклада нелинейной рефракции и работы [1], в которой нелинейная рефракция наряду с двухфотонным поглощением обеспечивает работоспособность оптических ограничивающих устройств.

Для того чтобы получить оценку влияния рассмотренных выше эффектов на процесс двухфотонного поглощения в GaAs и идентифицировать тем самым причину существования спектра значений  $\beta$ , приведенного в публикациях, мы выполнили экспериментальную проверку соотношения, которое следует из решения (4) основной системы уравнений (2)–(3). Для иллюстрации наших рассуждений рассмотрим решение (4), отвечающее случаю двух идентичных образцов GaAs, которые имеют различные коэффициенты отражения поверхностей ( $R_1$  и  $R_2$ ) за счет нанесения соответствующего покрытия. Нетрудно видеть, что соотношение двух зависимостей  $T_1(I_0)$  и  $T_2(I_0)$  для каждого из образцов с коэффициентами отражения  $R_1$  и  $R_2$  должно удовлетворять соотношению

$$\frac{T_1(R_1, I_0)}{T_2(R_2; I_0(1-R_1)/(1-R_2))} = \left(\frac{1-R_1}{1-R_2}\right)^2, \quad (6)$$

где  $I_0$  и  $I_0(1-R_1)/(1-R_2)$  — текущие значения аргумента для образцов с коэффициентами отражения  $R_1$  и  $R_2$  соответственно. Следовательно, измеряя зависимость наведенного поглощения  $T(I_0)$  указанных образцов и вычисляя (6), мы в состоянии определить, насколько корректно и в каком диапазоне интенсивности  $I_0$  результаты эксперимента отвечают решению (4) или, что то же самое, справедливости упрощающих предположений (п. 1–4).

Эксперименты были выполнены с использованием генератора пикосекундных импульсов ( $\text{YAl}_2\text{O}_3 : \text{Nd}^{3+}$ ), работавшего в режиме самосинхронизации мод по схеме сталкивающихся импульсов в кювете с насыщающимся поглотителем (спиртовой раствор красителя 3274) [15]. Выделенный из цуга одиночный импульс усиливался в однопроходовом усилителе до энергии (5–7) мДж при длительности импульса на половине высоты 28 пс. Эксперименты включали измерения зависимости пропускания GaAs от пиковой интенсивности импульса  $T(I_0)$ , а также определение зависимости пропускания от величины временной задержки по методу зондирования с предварительным возбуждением.

В качестве образцов использовались две пары пластин  $n$ -типа GaAs (ориентация [111], концентрация носителей  $2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ), имеющие толщину 0.45 и 2.8 мм с коэффициентами линейного поглощения на длине волны 1.06 мкм 2.34 и  $1.54 \text{ см}^{-1}$  соответственно. На боковые поверхности одного из образцов каждой пары были нанесены антиотражающие покрытия (АОП), так что  $R \leq 0.01$ . Следовательно, измеряемое отношение пропусканий каждой пары (6) должно быть равно 2. Результаты эксперимента и кривые численной подгонки (4) к этим результатам приведены на рис. 1. Отсюда видно, что, во-первых, в диапазоне интенсивностей накачки до  $4 \text{ ГВт/см}^2$  отношение пропусканий (6) выполняется с достаточно высокой точностью  $T_1(0)/T_2(R) = (2.0 \pm 0.1)$ , а, во-вторых,

значения  $\beta$ , определенные путем численной подгонки, равны  $(18 \pm 3)$  и  $(22 \pm 3)$  см/ГВт для каждой пары образцов соответственно. Отличие расчетной зависимости от данных эксперимента для образца  $d=0.45$  мм без АОП объясняется тем, что в (4) не учитывается многократное отражение. Численная подгонка осуществлялась с использованием значения  $\beta_1$ , полученного для образца  $d=0.45$  мм с АОП. Следовательно, в пределах указанной точности измерений результаты экспериментов корректно описываются решением (4), что в свою очередь означает справедливость пренебрежений «1»—«4», сделанных при решении (2)—(3).

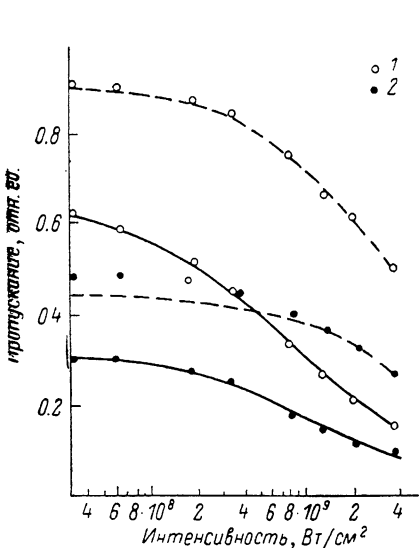


Рис. 1. Зависимость пропускания GaAs от пиковой интенсивности возбуждающего импульса.

Каждая точка эксперимента представляет результат усреднения по пяти измерениям. Штриховая и сплошная кривые относятся к образцам толщиной 0.45 и 2.8 мм соответственно. 1 — образец с АОП, 2 — без АОП. Результаты численной подгонки  $\beta_1 = (18 \pm 3)$ ,  $\beta_2 = (22 \pm 3)$  см/ГВт.

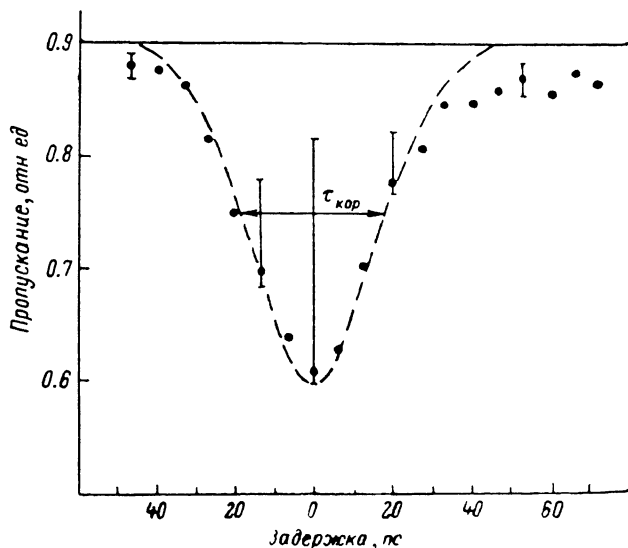


Рис. 2. Зависимость величины наведенного поглощения от задержки для образца толщиной 0.45 мм (АОП) при интенсивности возбуждающего импульса  $I_0 = 2$  ГВт/см<sup>2</sup>.

Отношение энергий возбуждающего и зондирующего импульсов  $1 \cdot 10^{-4} : 5 \cdot 10^{-4}$ . Сплошная линия соответствует невозмущенному пропусканию. Вертикальными отрезками обозначена область регистрируемого сигнала.  $\tau_{\text{корр}} = 39$  пс — время корреляции импульса гауссовой формы с длительностью 27 пс.

Дополнительным подтверждением пренебрежимой малости поглощения свободных носителей могут быть эксперименты зондирования двухфотонного поглощения с предварительным возбуждением при переменной временной задержке между возбуждающим и зондирующим импульсами. Зависимость пропускания образца GaAs от величины задержки представлена на рис. 2. Пунктирной линией обозначена свертка двух импульсов гауссовой формы, имеющая длительность 39 пс на полувысоте, что хорошо соответствует длительности используемого в эксперименте импульса. Выброс экспериментальных значений вблизи нулевой задержки объясняется параметрическим рассеянием части энергии возбуждающего импульса в канал зондирования за счет светондуцированной интерференционной решетки. Из этих результатов видно, что отклик наведенного поглощения преимущественно обусловлен двухфотонным поглощением, величина которого превосходит наблюдающийся на заднем фронте фон поглощения свободных носителей в соотношении примерно 10 : 1.

Итак, полученные результаты представляют собой экспериментальное доказательство отсутствия влияния нелинейной рефракции, поглощения свободных носителей и многократного отражения на характер двухфотонного поглощения светового импульса в объеме GaAs, который может

быть корректно описан системой уравнений (2)—(3) с упрощающими предположениями «1»—«4». Исключив перечисленные процессы из числа возмущающих слабоконтролируемых факторов, можно прийти к выводу, что представленный в литературе спектр значений  $\beta$ , включая данные настоящей работы, имеет своей причиной неучитываемые особенности зонной схемы GaAs. На наш взгляд, ими могут быть ионизованные глубокие уровни, которыми, как известно [16], в GaAs являются  $EL2$  донорные уровни, возникающие в результате нарушения стехиометрии. В этом случае очевидно, что межзонное поглощение через  $EL2$  уровень представляет собой также нелинейный ступенчатый процесс, который протекает наряду с двухфотонным поглощением и обеспечивает ему аддитивное слагаемое [17].

Авторы считают своим долгом выразить признательность Б. П. Захарчене за интерес и поддержку работы.

#### Список литературы

- [1] Van Stryland E., Vanherzeele H., Woodall M. A., Soileau M. J., Smirl A. L., Guha S., Boggess T. F. // *Optical Engin.* 1985. V. 24. N 4. P. 613—623.
- [2] Boggess T. F., Bohnert K. M., Mansour K., Moss S. C., Boyd I. W., Smirl A. L. // *IEEE J. Quant. Electr.* 1986. V. QE-22. N 2. P. 360—368.
- [3] Cao W.-L., Vaucher A. M., Lee G. H. // *Appl. Phys. Lett.* 1981. V. 38. N 5. P. 653—656.
- [4] Jain R. K. // *Optical Engin.* 1982. V. 21. N 2. P. 199—218.
- [5] Ахманов С. А., Дьяков Ю. Е., Чиркин А. С. Введение в статистическую радиофизику и оптику. М.: Наука, 1981. 587 с.
- [6] Bosacchi B., Bessey J. S., Jain F. C. // *J. Appl. Phys.* 1978. V. 49. N 8. P. 4609—4611.
- [7] Jayaraman S., Lee C. H. // *Appl. Phys. Lett.* 1972. V. 20. N 2. P. 322—325.
- [8] Bechtel J. H., Smith W. L. // *Phys. Rev. B.* 1976. V. 13. N 8. P. 3515—3522.
- [9] Wang C. C. // *Phys. Rev. B.* 1970. V. 2. N 3. P. 2045—2052.
- [10] Jain R. K., Klein M. B. *Optical Phase Conjugation* // Ed. R. A. Fisher. N. Y.: Acad. Press, 1983. 487 p.
- [11] Smirl A. L., Boggess T. F., Moss S. C. // *J. Lumin.* 1985. V. 30. N 2. P. 272—289.
- [12] Ахманов С. А., Выслоух В. А., Чиркин А. С. // *УФН.* 1986. Т. 149. № 3. С. 449—509.
- [13] Бугаев А. А., Захарченя Б. П., Киселев Ю. Б., Лукошкин В. А. // *Письма в ЖТФ.* 1986. Т. 12. № 18. С. 1125—1130.
- [14] Бугаев А. А., Захарченя Б. П., Киселев Ю. Б., Лукошкин В. А. // *ДАН СССР.* 1987. Т. 296. № 5. С. 1098—1100.
- [15] Vanherzeele H., Siegman A. L. // *Appl. Opt.* 1981. V. 20. N 10. P. 3484—3486.
- [16] Martin G. M., Makram-Ebeid S. // *Deep Centers in Semiconductors* / Ed. S. T. Pantelides. N. Y.: Gordon and Breach, 1986. P. 399—487.
- [17] Kaminska M., Skowronski M., Ladowski J., Parsey J. M., Gatos H. // *Appl. Phys. Lett.* 1983. V 43. N 4. P. 302—304.

Физико-технический институт  
им. А. Ф. Иоффе АН СССР  
Ленинград

Поступило в Редакцию  
24 января 1989 г.