

## ПРОЯВЛЕНИЕ УРОВНЕЙ РАЗМЕРНОГО КВАНТОВАНИЯ В СПЕКТРАХ НЕЛИНЕЙНОГО ПРОПУСКАНИЯ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ МИКРОКРИСТАЛЛОВ

*Ю.В.Вандышев, В.С.Днепровский, В.И.Климов*

*Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова  
119899, Москва*

Поступила в редакцию 19 февраля 1991 г.

Зарегистрированы пики просветления, связанные с переходами между уровнями размерного квантования, в спектрах пропускания микрокристаллов CdSe (80, 300К), возбуждаемых пикосекундными импульсами света. Исследована динамика восстановления пропускания, которая объяснена в рамках модели заполнения дискретных уровней зоны проводимости и валентной зоны.

Эффект размерного квантования в полупроводниковых микрокристаллах может приводить к появлению дискретных энергетических уровней, связанных с квантованием энергии поступательного движения экситона (в сравнительно больших микрокристаллах) или энергии движения электрона и дырки (в микрокристаллах малого радиуса)<sup>1,2</sup>. Уширение этих уровней, вызванное разбросом микрокристаллов по размерам и форме, затрудняет наблюдение связанной с ними дискретной структуры спектров обычными методами линейной спектроскопии.

В настоящей работе исследована динамика восстановления спектров пропускания микрокристаллов CdSe (80, 300K) после действия мощного ультракороткого импульса (УКИ) света. Зарегистрирована структура, определяемая уровнями размерного квантования электронов и дырок, отсутствующая в спектрах пропускания невозбужденных образцов.

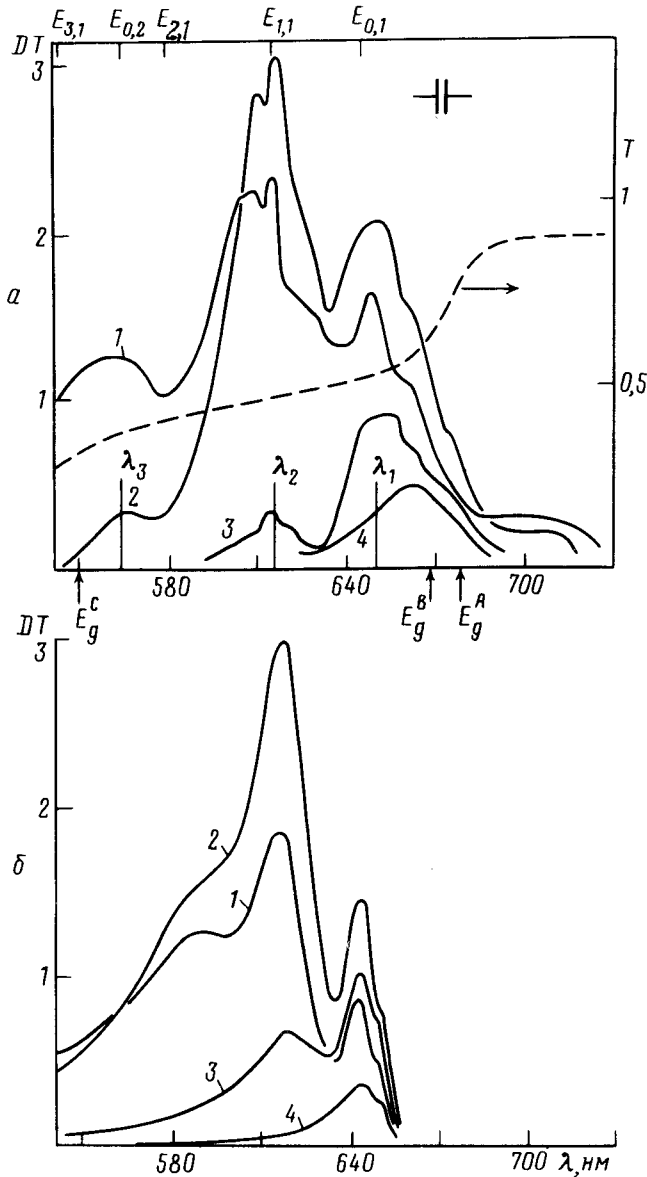


Рис. 1. Измеренные (а) и рассчитанные (б) дифференциальные спектры пропускания микрокристаллов CdSe (80 К) (штрих - спектр пропускания невозбужденного образца): а -  $\omega = 0,12$  мДж;  $\Delta t = 0$  (1), 66 пс (2), 1 нс (3), 2 нс (4); б -  $T_e = 500$  К (1), 80 К (2, 3, 4);  $N = 12$  (1, 2), 4 (3), 1 (4)

Были исследованы образцы легированного CdSe стекла с радиусом микрокристаллов до 10 нм. Возбуждение образцов осуществлялось УКИ второй гармоники неодимового лазера (YAG: Nd<sup>3+</sup>), работающего в режиме самосинхронизации мод. Длительность одиночного импульса накачки

составляла 20 - 25 пс, энергия  $w \leq 0,2$  мДж. Возбуждающее излучение фокусировалось на образец в пятно диаметром 0,5 - 1 мм, центральная часть которого зондировалась пучком "белого" света, полученного при облучении кюветы с тяжелой водой УКИ лазера с длиной волны 1,06 мкм. Линия задержки позволяла изменять запаздывание зондирующего импульса относительно возбуждающего от 0 до 3 нс. Регистрация зондирующего излучения (до и после образца) осуществлялась с помощью двух многоканальных анализаторов OVA-284 при селекции по энергии УКИ накачки с точностью  $\pm 10\%$ . В ходе экспериментов регистрировались дифференциальные спектры пропускания  $DT(\lambda) = [T(\lambda) - T_0(\lambda)]/T_0(\lambda)$  ( $T(\lambda)$  и  $T_0(\lambda)$  - спектры пропускания возбужденного и невозбужденного образца, соответственно).

Действие возбуждающего импульса приводило к сильному просветлению с коротковолновой стороны от края поглощения образца (рис.1а). С увеличением времени задержки  $\Delta t$  спектральная область, в которой наблюдалось просветление, сужалась, при этом коротковолновый край спектра  $DT(\lambda)$  смещался в сторону низких энергий, а длинноволновый практически не менял своего положения. В спектрах  $DT(\lambda)$  хорошо разрешались пики просветления с максимумами  $\lambda_1 = 649$ ,  $\lambda_2 = 616$  и  $\lambda_3 = 563$  нм (в спектрах пропускания невозбужденных образцов они не наблюдались; рис.1а). В области полос  $\lambda_2$  и  $\lambda_3$  было зарегистрировано значительное усиление, по величине близкое к коэффициенту поглощения невозбужденного образца. Динамика релаксации просветления в области полос  $\lambda_1, \lambda_2$  и  $\lambda_3$  сильно различалась. Полоса  $\lambda_3$  практически полностью исчезала из спектров  $DT(\lambda)$  за первые 70 пс после действия УКИ возбуждения, в то время как полоса  $\lambda_2$  в течение этого времени росла по амплитуде, а лишь затем затухала за время около 2 нс. Наиболее долгоживущий пик  $\lambda_1$  присутствовал в спектрах  $DT(\lambda)$  вплоть до максимальных задержек  $\Delta t = 3$  нс.

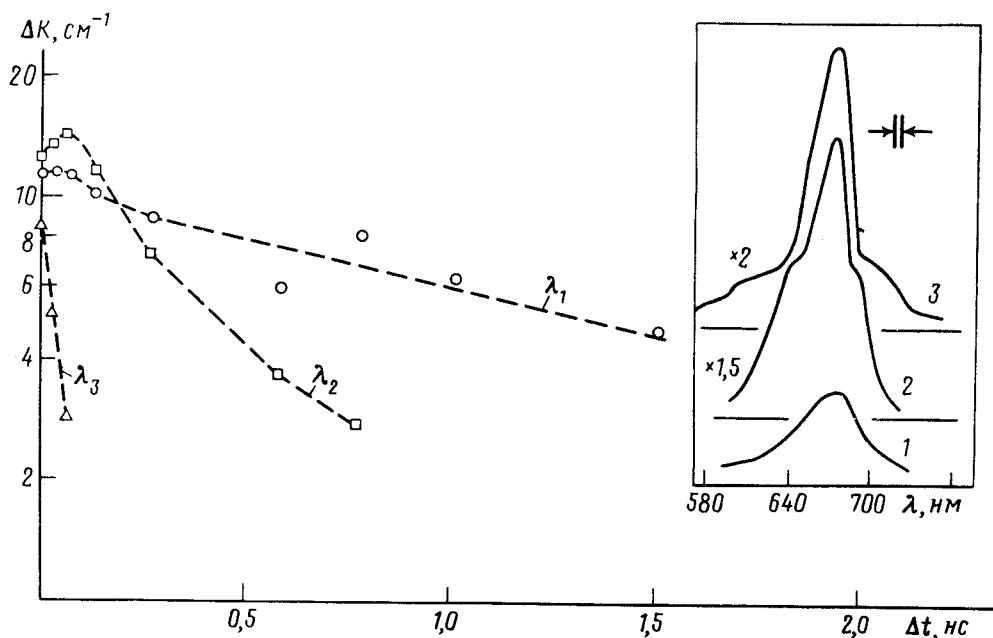


Рис. 2. Динамика изменения величины  $\Delta K(\lambda)$  в области полос  $\lambda_1, \lambda_2$  и  $\lambda_3$  с увеличением времени задержки  $\Delta t$ . На вставке приведены спектры люминесценции микрокристаллов CdSe (80 К) при  $w = 0,01$  мДж (1), 0,042 мДж (2), 0,12 мДж (3)

Спектральное положение пиков  $\lambda_1$ ,  $\lambda_2$  и  $\lambda_3$ , а также динамика их затухания позволяют связать наблюдаемое просветление с заполнением фотовозбужденными носителями уровней размерного квантования электронов и дырок. Положение пиков поглощения, связанных с переходами между уровнями размерного квантования в валентной зоне и зоне проводимости определяется соотношением <sup>1</sup>:  $E_{l,n} = E_g + \hbar^2 \varphi_{l,n}^2 / (2m_r R^2)$ , где  $E_g$  - ширина запрещенной зоны,  $m_r = m_e m_h / (m_e + m_h)$  ( $m_e$  и  $m_h$  - эффективные массы носителей),  $R$  - радиус микрокристалла,  $\varphi_{l,n}$  -  $n$ -ый корень функции Бесселя  $J_{l+1/2}$ . При  $R = 5 - 6$  нм энергии первых двух переходов  $E_{0,1}$  и  $E_{1,1}$  практически совпадают с положением пиков  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  (рис. 1а). Пик  $\lambda_3$  лежит в области переходов с энергиями  $E_{2,1}$ ,  $E_{0,2}$ ,  $E_{3,1}$ .

Для анализа полученных результатов были рассчитаны спектры поглощения возбужденных и невозбужденных микрокристаллов. Производилось суммирование вкладов от 10 нижних уровней размерного квантования с учетом  $A$ ,  $B$  и  $C$  подзон валентной зоны. Неоднородное уширение полосы поглощения, связанной с отдельным переходом, описывалось с помощью функции распределения микрокристаллов по размерам  $P(u)$  ( $u = R/\bar{R}$ ;  $\bar{R}$  - средний радиус микрокристаллов), полученной Лифшицем и Слезовым <sup>3</sup>. Окончательное выражение для коэффициента поглощения имело вид

$$K(\hbar\omega) = G \sum_i f_i \sum_l \sum_n (1 - n_{i,n}^e - n_{i,l,n}^h) \int_0^\infty P(u) \delta(\hbar\omega - E_{l,n}^i) du,$$

где  $E_{l,n}^i = E_g^i + \hbar^2 \varphi_{l,n}^2 / (2m_r R^2)$  ( $E_g^i$  - ширина, запрещенной зоны, связанной с  $i$ -ой валентной подзоной),  $f_i$  - усредненные по поляризациям силы осцилляторов,  $n_{i,n}^e$  и  $n_{i,l,n}^h$  - числа заполнения уровней,  $G$  - константа, пропорциональная квадрату модуля матричного элемента дипольного момента. Числа заполнения находились в предположении квазиравновесного фермиевского распределения по энергии с некоторой электронной температурой  $T_e$ . Полное число электронно-дырочных (ЭД) пар в микрокристалле ( $N$ ), оценивалась исходя из измеренного пропускания на длине волны накачки и объемной концентрации полупроводника в стекле (около 1%). При  $\omega = 0.12$  мДж и  $R = 5 - 6$  нм  $N$  около 10. В рассчитанных спектрах  $DT(\lambda)$  (рис. 1б) четко проявлялись пики просветления (усиления), связанные с первыми двумя уровнями размерного квантования. Их положение соответствовало экспериментально измеренному при  $\bar{R} = 5$  нм, что согласуется со сделанными ранее простыми оценками для  $R$ .

С целью определения релаксационных характеристик ЭД системы исследовалась динамика изменения во времени величины  $\Delta K = K_0 - K$  в области полос  $\lambda_1$ ,  $\lambda_2$  и  $\lambda_3$ , которая в рамках модели заполнения уровней пропорциональна полному числу носителей в состояниях, связанных с рассматриваемым переходом.

Наблюдаемая на начальном этапе ( $\Delta t < 70$  пс) быстрая релаксация пика  $\lambda_3$  (с характерным временем  $\tau = -\Delta K(d(\Delta K)/dt)^{-1} = 60$  пс) и незначительный рост амплитуды полос  $\lambda_2$  и  $\lambda_3$  (рис. 2) можно объяснить остыванием носителей, сопровождающимся их переходом из более высоколежащих состояний в два нижних (см. спектры 1, 2 на рис. 1а и б). Дальнейшее поведение системы ( $\Delta t > 70$  пс) определялось, по-видимому, рекомбинацией носителей (спектры 3, 4 на рис. 1а и б), в ходе которой происходило исчезновение пика  $\lambda_2$  (характерное время  $\tau$  для него увеличивалось с ростом  $\Delta t$  от 300 до 700 пс) и частичная релаксация наиболее долгоживущей

полосы  $\lambda_1$ , величина  $\Delta K$  для которой убывала практически экспоненциально с характерным временем около 2 нс.

Неэкспоненциальное убывание числа ЭД пар, регистрируемое на начальном этапе распада, можно объяснить оже-рекомбинацией <sup>4</sup> или действием индуцированных процессов. Рассеяние усиленного излучения на гранях кристалла визуально регистрировалось уже при уровнях возбуждения  $w > 20$  мкДж. В спектрах люминесценции при этом на вершине широкой полосы спонтанного излучения появлялся сравнительно узкий пик усиленной люминесценции (вставка на рис. 2).

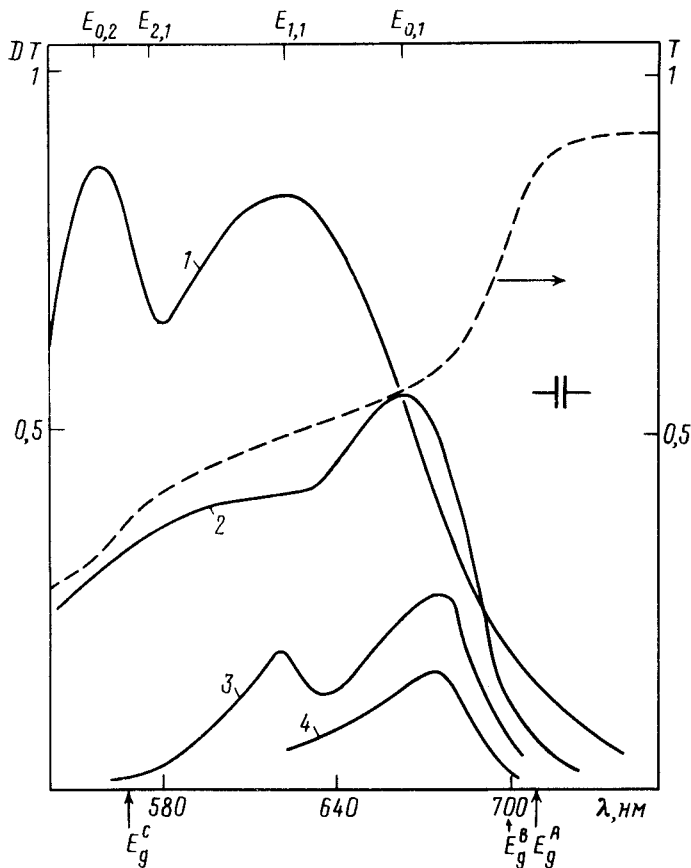


Рис. 3. Дифференциальные спектры пропускания микрокристаллов CdSe (300 К) при  $w = 0,056$  мДж и  $\Delta t = 0$  (1), 13 пс (2), 27 пс (3), 40 пс (4) (штрих - спектр пропускания невозбужденного образца)

При температуре 300К действие УКИ накачки также приводило к значительному просветлению образцов (рис. 3). Максимальная величина  $DT$  в этом случае была несколько меньше единицы, а время релаксации наведенного просветления не превышало 40 пс. В спектрах  $DT(\lambda)$ , как и при азотной температуре, отчетливо различались пики, связанные с уровнями размерного квантования.

В заключение авторы благодарят Екимова А.И. за любезно предоставленные образцы.

#### Литература

1. Эфрос Ал.Л., Эфрос А.Л. ФТП, 1982, 16, 1209.
2. Екимов А.И., Онущенко А.А. Эфрос Ал.Л. Письма в ЖЭТФ, 1986, 43, 292.

3. Лифшиц И.М., Слезов В.В. ЖЭТФ, 1958, 35, 479.

4. Dneprovskii V.S., Efros A.I., Ekimov A.I., Klimov V.I., Kudriavtsev I.A., Novikov M.G. Sol. St. Comm., 1990, 74, 555.

---