

ПИКОСЕКУНДНАЯ КИНЕТИКА ИК ОТРАЖЕНИЯ И ПРОПУСКАНИЯ В СИЛЬНО ВОЗБУЖДЕННЫХ КРИСТАЛЛАХ A_2B_6

Э. Куоштинс, Дж. Крус¹⁾, Г. М. ван Дрил¹⁾

Исследовано временное поведение отражения и пропускания с пикосекундной разрешенностью излучения на длине волны $\lambda = 2,8$ мкм в монокристаллах CdSe, $CdS_{1-x}Se_x$, возбужденных мощным импульсом сильно поглощаемого света. Обнаружена конкуренция нескольких механизмов модуляции комплексного показателя преломления вещества.

Использование пикосекундных импульсов света большой интенсивности для возбуждения полупроводников позволяет создавать в них очень плотную электронно-дырочную плазму ($n \sim 10^{20}$ см⁻³). В этих условиях обычно считается, что основной причиной модуляции комплексного показателя преломления вещества, а следовательно и коэффициентов отражения и поглощения, в ИК диапазоне являются именно свободные неравновесные носители заряда (ННЗ)^{1,2}. Изучение в настоящей работе динамики оптических свойств в ИК диапазоне в прямозонных кристаллах A_2B_6 показывает наличие еще одного конкурирующего механизма с участием примесных центров.

Исследовались объемные монокристаллические образцы CdSe и $CdS_{1-x}Se_x$, приготовленные в виде плоскопараллельных пластинок толщиной 1-2 мм с отшлифованными поверхностями. В качестве задающего генератора световых пикосекундных импульсов использовался лазер на гранате ($h\nu = 1,17$ эВ) с активно-пассивной синхронизацией мод. Выделенные одиночные импульсы с частотой повторения 10 Гц усиливались четырехпроходным усилителем. Кристаллы возбуждались излучением второй гармоники основной частоты лазера ($h\nu = 2,33$ эВ) с максимальной энергией в импульсе 1 мДж. Зондирование осуществлялось ИК лучем ($\lambda = 2,8$ мкм), получаемым в ячейке ВКР с газом метана, куда запускалась часть основного излучения пикосекундного лазера. Возбуждающий и зондирующий лучи направлялись перпендикулярно поверхности образцов, причем с целью анализа более однородной области диаметры пучков выбраны соответственно 1 и 0,3 мм. Интенсивность отраженных и прошедших кристалл импульсов регистрировалась с помощью откалиброванных фотодиодов, сигналы которых статистически обрабатывались микроЭВМ. Она же управляла линией оптической задержки между возбуждающим и зондирующим импульсами.

На рис. 1 и 2 крестиками показаны экспериментальные кинетики отражения (верхние зависимости) и пропускания (нижние) соответственно в кристаллах CdSe и $CdS_{0,6}Se_{0,4}$. В зависимостях можно выделить быструю и более медленную часть, причем последняя свойственна кинетикам пропускания как для CdSe, так и для $CdS_{1-x}Se_x$. Если же в отражении кристаллов CdSe наблюдается лишь быстрое уменьшение и восстановление коэффициента отражения, то для твердого раствора $CdS_{0,6}Se_{0,4}$ свойственно то, что по окончании возбуждающего импульса изменение отражения меняет знак и достаточно медленно (с характерным временем ~ 1 нс) релаксирует к исходному значению (рис. 2). Следует заметить, что явлением плазменного резонанса² этого объяснить не удастся, поскольку в данном случае коэффициент отражения по окончании возбуждающего импульса должен достигать минимального значения вторично и только после этого релаксировать к исходному значению. Сомнения по поводу участия в данном процессе только свободных ННЗ вызывает также достаточно медленное восстановление как отражения, так и пропускания, так как в прямозонных кристаллах при столь сильных возбуждениях из-за индуцированных излучательных переходов, а также бимолекулярной рекомбинации вре-

¹⁾ University of Toronto, Canada.

мена жизни ННЗ в рассматриваемом отрезке времени должны быть гораздо короче³. Большая дефектность твердых растворов по сравнению с исходными соединениями A_2B_6 ⁴, а также корреляция медленных частей кинетик отражения и пропускания (рис. 2) подсказывают идею об участии в процессе примесных уровней. Анализ различных моделей оптических переходов показал, что все наблюдаемые закономерности можно объяснить включая лишь один центр рекомбинации, которым, по-видимому, является иони-

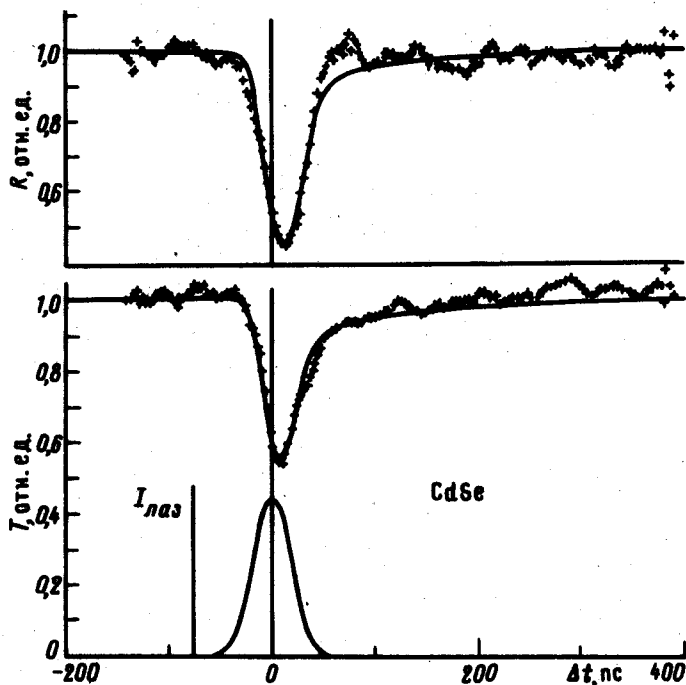


Рис. 1. Кинетики отражения (верхняя часть) и пропускания (нижняя) пробного излучения в монокристаллах CdSe при энергии возбуждения в импульсе ~ 300 мкДж. Крестики отвечают экспериментальным данным, сплошные линии — расчету (см. текст), проведенному для следующих значений параметров: $I_0/hvd = 10^{31} \text{ см}^{-3} \text{ с}^{-1}$, $\gamma_1 = 4 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$, $\gamma_2 = 8 \cdot 10^{-10} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$, $\gamma_b = 3 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$, $\tau_R = 5 \text{ нс}$, $N = 1,5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, $\sigma' I/hv = 3 \cdot 10^{11} \text{ с}^{-1}$, $\sigma'' I/hv = 2 \cdot 10^{12} \text{ с}^{-1}$, $\sigma_0 = 1,4 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$.

зированный донор (см. вставку на рис. 2). В этом случае кинетические уравнения для концентрации ННЗ n и нейтральных (способных поглощать зондирующее излучение) примесных центров N^0 из общей их концентрации N , отбросив диффузионные составляющие ввиду малости временного отрезка, принимают вид:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{I}{hvd} - \gamma_b n^2 - \frac{n}{\tau_R}, \quad (1)$$

$$\frac{dN^0}{dt} = \sigma' \frac{I}{hv} (N - N^0) - \sigma'' \frac{I}{hv} N^0 + \gamma_1 n (N - N^0) - \gamma_2 n N^0. \quad (2)$$

Здесь $I = I_0 \exp(-t^2/\tau^2)$ — плотность мощности возбуждения с характерным гауссовым параметром $\tau \approx 20$ пс, γ_b — коэффициент бимолекулярной рекомбинации ННЗ, γ_1 , γ_2 — соответственно коэффициенты захвата электрона и дырки, σ' , σ'' — сечения захвата фотона возбуждающего излучения примесным уровнем соответственно для переходов 3 и 2 (см. вставку на рис. 2). В модели предполагается, что в рассматриваемом интервале времени $n = p \gg N$, а возбужденная область толщины d однородна. Временные зависимости n и N^0 определяют комплексный показатель преломления $\tilde{n} = n_R + ik$, который в свою очередь отвечает за коэффициент отражения R и пропускания T . При перпендикулярном

$$R = \frac{(n_R - 1)^2 + k^2}{(n_R + 1)^2 + k^2}, \quad (3)$$

$$T = (1 - R) \exp(-\alpha d). \quad (4)$$

Здесь $\alpha = \alpha_0 + \alpha N^0$ — результирующий коэффициент поглощения, где α_0 обусловлен свободными ННЗ, а α — сечение захвата фотона зондирующего излучения примесным центром (переходы 4 на вставке рис. 2). Используя известные взаимосвязи комплексных оптических констант⁵, формулы для модели Друде^{1,2}, а также (1)–(4) можно рассчитать кинетику R и T . На рис. 1 и 2 результаты таких расчетов изображены сплошными линиями, а параметры, использованные при расчете, указаны в подписях к рисункам. Как видно, достигается весьма удовлетворительное согласие, если учесть условность ряда допущений модели. В первую очередь это касается однородности возбужденной области, в которой на самом деле имеются градиенты как концентрации ННЗ, так и степени заполнения примесных уровней. По-видимому, этим можно объяснить более ярко выраженные отличия экспериментальных данных и теоретических кривых кинетики пропускания в кристаллах $\text{CdS}_{0,6}\text{Se}_{0,4}$ с большей концентрацией примесных центров (рис. 2, нижние зависимости).

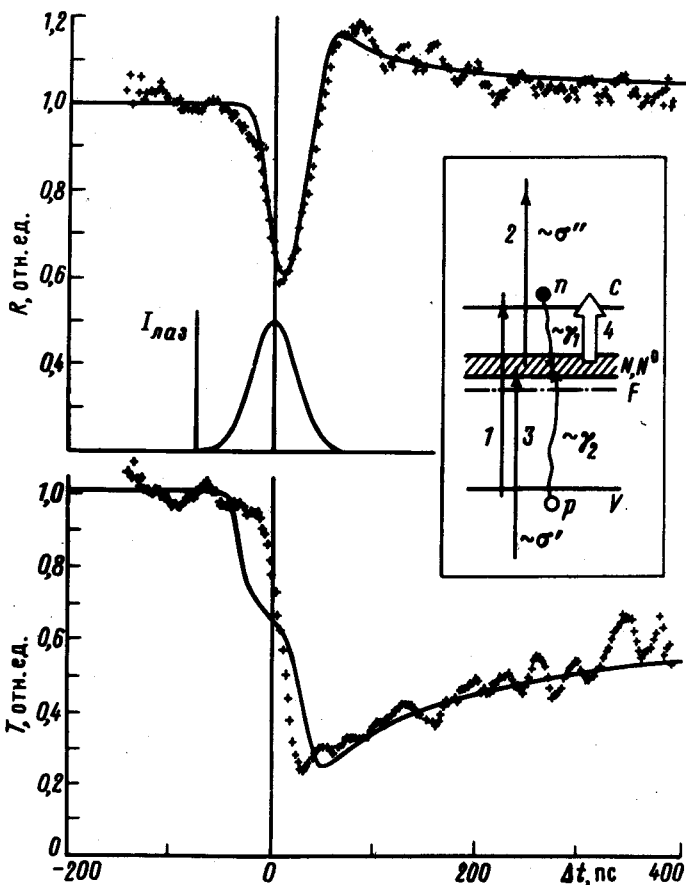


рис. 2. Временные зависимости отражения (верхняя часть) пропускания (нижняя) в монокристаллах $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$ при тех же условиях, указанных к рис. 1. При расчете теоретических сплошных линий использовано значение концентрации примесных центров $N = 3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. На вставке изображена схема оптических переходов.

В заключение отметим, что проводимый анализ одновременного сопоставления данных по кинетикам ИК отражения и пропускания импульсно-возбужденных кристаллов позволяет получить информацию о параметрах центров рекомбинации. Так, в случае твердых растворов $\text{CdS}_{0,6}\text{Se}_{0,4}$ оптические переходы электрона из примесного уровня в зону проводимости более эффективны чем из валентной зоны на примесный уровень (соответственно стрелки 2 и 3 на вставке рис. 2). Энергия залегания этого центра 0,1 – 0,44 эВ от дна зоны проводимости, концентрация – $3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Интересно отметить, что рассчитанная концентрация таких центров в CdSe более чем на порядок меньше.

Литература

1. Галкин Г.Н., Блинов Л.М., Вавилов В.С., Соломатин А.Г. Письма в ЖЭТФ, 1968, 7, 93.
2. Gallant M.I., van Driel H.M. Phys. Rev. B, 1982, 26, 2133.
3. Tanaka S., Saito H., Shionoya S. In Semiconductors Probed by Ultrafast Laser Spectroscopy. New York: Academic, 1984, 1, ch. 6.
4. Goede O., Hennig D., John L. Phys. Stat. Sol. (b), 1979, 96, 671.
5. Born M., Wolf E. Principles of Optics. New York: Pergamon Press, 1984.

Вильнюсский государственный университет
им. В.Капсукаса

Поступила в редакцию
30 января 1989 г.