

## ФЕМТОСЕКУНДНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ ВОЗБУЖДЕННЫХ НОСИТЕЛЕЙ В МИКРОКРИСТАЛЛИТАХ $\text{CdSe}_x\text{S}_{1-x}$ В СТЕКЛЯННОЙ МАТРИЦЕ ПРИ ВЫСОКОЙ ИНТЕНСИВНОСТИ ВОЗБУЖДЕНИЯ

*Ю.Е.Лозовик, Ю.А.Матвеец, А.Г.Степанов,  
В.М.Фарзтдинов, С.В.Чекалин, А.П.Ярцев*

Обнаружено, что время релаксации носителей, возбужденных в селено-кадмиевых микрокристаллитах лазерным импульсом интенсивностью  $10^{10}$ – $10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup>, не превышает 30 фс. Анализ данных эксперимента показал, что основными механизмами релаксации возбужденных носителей являются процессы рассеяния носитель–носитель и оже-рекомбинация.

Методы фемтосекундной лазерной спектроскопии интенсивно используются в последние годы для исследования релаксации возбужденных носителей в полупроводниках<sup>1,2</sup>. Особое внимание привлекают стекла, легированные микрокристаллитами  $\text{CdSe}_x\text{S}_{1-x}$ . Этот доступный материал имеет очень большую нелинейную восприимчивость и быстрое время отклика, что делает его перспективным для оптоэлектроники. Размеры микрокристаллитов в промышленных образцах стекол порядка 100 Å, их концентрация  $\sim 10^{15}$  см<sup>-3</sup>. В работах<sup>1,3</sup>

показано, что при плотности возбужденных носителей  $N$  меньше  $10^{18} \text{ см}^{-3}$  основным механизмом внутризонной релаксации в таких стеклах является рассеяние возбужденных носителей оптическими фононами с характерным временем 200–500 фс, а время межзонной рекомбинации измеряется десятками пикосекунд. В настоящей работе исследовалась релаксация возбужденных носителей в промышленных фильтрах RC-8 Schott при существенно больших плотностях носителей, когда интенсивность возбуждающего фемтосекундного импульса близка к порогу разрушения.

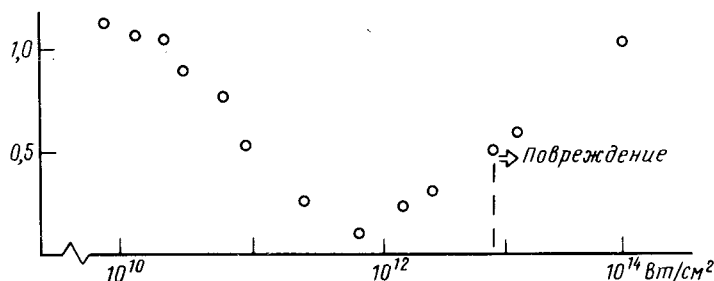


Рис. 1. Оптическая плотность образца для возбуждающего импульса при различных интенсивностях

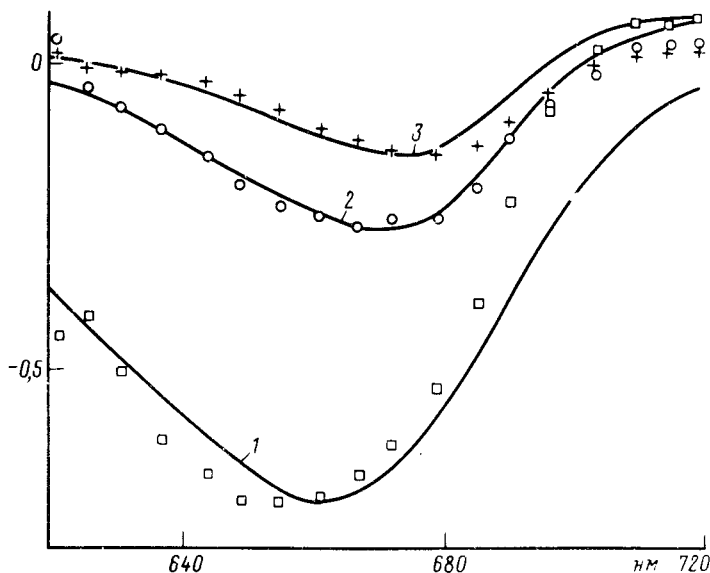


Рис. 2. Экспериментальные и рассчитанные разностные спектры:  $I$  ( $10^{10} \text{ Вт/см}^2$ ) – 9 ( $\square$ ); 1,8 ( $\circ$ ); 1,2 ( $+$ );  $N$  ( $10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) – 18,5 (1); 7,5 (2); 4,5 (3)

Исследуемый образец толщиной 400 мкм возбуждался 300 фс импульсом на длине волны 612 нм (200 мэВ выше дна зоны проводимости). Интенсивность возбуждения  $I$  могла меняться в пределах  $10^{10}$ – $10^{13} \text{ Вт/см}^2$  с помощью нейтральных светофильтров и изменения фокусировки. Оптическая плотность образца на длине волны возбуждения  $\sim 1$ . Для исследования динамики изменения поглощения образца область возбуждения зондировалась широкополосным импульсом фемтосекундного континуума, задержанным относительно возбуждающего <sup>4</sup>. Интенсивность зондирующего импульса не превышала  $10^9 \text{ Вт/см}^2$ . С помощью многоканального оптического анализатора, соединенного с ЭВМ, регистрировались спектры возбужденного и невозбужденного образца в спектральном диапазоне 600 – 720 нм, включающем интервал от уровня возбуждения до дна зоны, при различных задержках зондирующего импульса и вычислялись разностные спектры. В отдельных экспериментах с широкополосным кра-

сителем определялась относительная задержка различных спектральных компонент зондирующего импульса, составившая 13 фс/нм. При этом коротковолновые компоненты имели меньшую задержку. Для определения количества фотонов возбуждающего импульса, поглощенных в образце, был проведен дополнительный эксперимент, в котором одновременно измерялась падающая на образец и проходящая через него энергия (отражение не превышало 4%). Все эксперименты проводились при комнатной температуре.

Зависимость оптической плотности образца от интенсивности возбуждающего импульса  $I$  приведена на рис. 1. Видно, что образец просветляется почти полностью при  $10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>, затем наблюдается рост поглощения и при  $10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> происходит повреждение образца. Разностные спектры, снятые при  $I = 10^{10} - 10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup>, приведены на рис. 2 для задержки 3 пс. Наблюдаемый сдвиг максимума выцветания в сторону коротких волн и уширение полосы выцветания связаны с заполнением зон носителями (сдвиг Бурштейна – Мосса). С учетом запаздывания различных спектральных компонент зондирующего импульса оказалось, что кинетики выцветания на всех длинах волн одинаковы: их передний фронт соответствуют интегралу функции корреляции возбуждающего и зондирующего импульсов, и затем величина выцветания не меняется вплоть до задержки 40 пс. Из этого следует, что релаксация возбужденных носителей на дно зоны не превышает  $10^{-13}$  с, а время межзонной рекомбинации по крайней мере больше 500 пс. Оценка времени ухода возбужденных носителей с уровня возбуждения  $\tau$  была сделана по величине просветления на 612 нм для минимальной интенсивности ( $10^{10}$  Вт/см<sup>2</sup>) по методике <sup>5</sup>. Как видно из рис. 2, выцветание на длине волны возбуждения не превышает уровня шумов. С другой стороны плотность поглощенных фотонов при этой интенсивности составляет  $10^{20}$  см<sup>-3</sup>, поэтому при отсутствии релаксации просветление образца на длине волны возбуждения было бы полным. Сравнение этих величин дает оценку сверху на время релаксации  $\tau < 30$  фс, что существенно короче времен, наблюдавшихся при  $I$  до  $10^9$  Вт/см<sup>2</sup> <sup>3</sup>.

Были рассчитаны разностные спектры образца при задержке 3 пс с учетом зависимости обменно-корреляционного сдвига <sup>6</sup> и скорости внутризонной релаксации, определяющей ширину линии поглощения, от концентрации заряженных частиц  $N$ . Наилучшее согласие с экспериментальными спектрами получилось при  $N$ , более, чем на порядок меньших плотности поглощенных фотонов, определенной из данных рис. 1. Например, при  $I = 10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup> наилучшее согласие дает  $N = 2 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup> (рис. 2), хотя из данных рис. 1 можно заключить, что плотность поглощенных фотонов при такой интенсивности  $5 \cdot 10^{20}$  см<sup>-3</sup> (объемная доля микрокристаллитов, рассчитанная из спектра поглощения образца –  $3,3 \cdot 10^{-3}$ ). Вкладом двухфотонного поглощения при  $I < 10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup> можно пренебречь <sup>7</sup>, поэтому объяснить расхождение можно, лишь предположив, что за время  $< 1$  пс происходит рекомбинация частиц. Мы полагаем, что рекомбинация происходит вследствие оже-процессов, хотя в последних работах <sup>1</sup> роль этого процесса в микрокристаллитах в стекле подвергается сомнению. Резкое увеличение скорости оже-рекомбинации в момент прохождения импульса связано с быстрым увеличением  $N$  и высокой температурой носителей, обусловленной превышением частоты импульса возбуждения ширины запрещенной зоны примерно на 200 мэВ. После прохождения импульса накачки оже-процессы должны прекратиться за время меньше пикосекунды из-за быстрого (с характерным временем 200 – 500 фс) остывания носителей. Сопоставление расчетных и экспериментальных разностных спектров позволило оценить скорость релаксации. Для  $I = 10^{10}$  Вт/см<sup>2</sup> было получено время  $\tau = 30$  фс, что согласуется с оценкой, полученной из величины выцветания на 612 нм.

Авторы благодарны В.С.Летохову за ценные обсуждения.

#### Литература

1. Williams V.S. et al. J. Mod. Opt., 1988, 35, 1979.
2. Becker P.S. et al. Phys. Rev. Lett., 1988, 61, 1647.

3. *Nuss M.C., Zinth W., Kaiser W.* Appl. Phys. Lett., 1986, **49**, 1717.
4. *Matveetz Yu.A., Chekalin S.V., Sharkov A.V.* J. Opt. Soc. Am. B, 1985, **2**, 634.
5. *Sharkov A.V. et al.* Biochim. et Biophys. Acta, 1985, **808**, 94.
6. *Vashishta P., Kalia R.K.* Phys. Rev., 1982, **825**, 6492.
7. *Van Stryland E.W. et al.* Opt. Acta, 1986, **33**, 381–6.

Институт спектроскопии  
Академии наук СССР

Поступила в редакцию  
15 июня 1990 г.

---