

О НЕЛИНЕЙНОМ ПОГЛОЩЕНИИ СВЕТА В МОНОКРИСТАЛЛАХ ZnO

Р.Балтрамеюнас, В.Гаврюшин, В.Кубертавичюс,
Г.Рачюкайтис

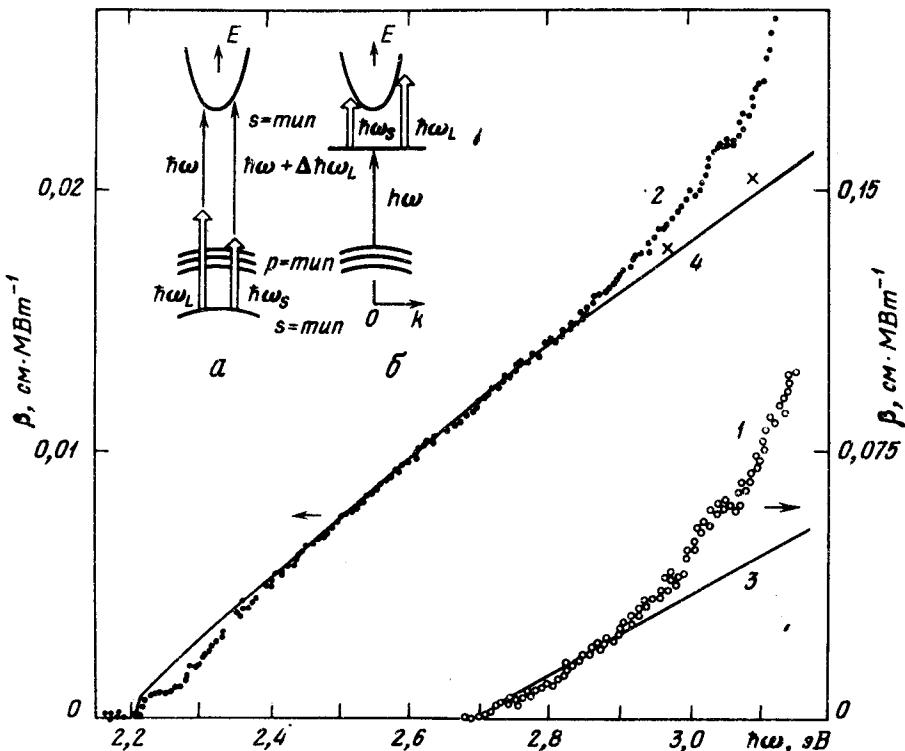
Исследованы процессы собственного двухфотонного поглощения (ДФП) в полупроводниковых ZnO. Показано, что в формировании спектров НП исследованных кристаллов участвуют, кроме ДФП, процессы примесного двухступенчатого поглощения. Предполагавшееся ранее рядом авторов влияние процессов ДФП из глубоколежащих валентных состояний не подтвердилось.

Одним из отличительных свойств двухфотонной спектроскопии является возможность исследования оптических переходов, запрещенных однофотонно, так как правила отбора по симметрии для этих процессов существенно различаются. Это свойство двухфотонного поглощения (ДФП) использовалось в работе¹ для объяснения экспериментальных результатов в ZnO, где в коротковолновой части спектра был обнаружен резкий рост коэффициента ДФП. Указанное увеличение нелинейного поглощения интерпретировалось на основе теоретических расчетов зонной структуры гексагонального ZnO² проявлением двухфотонных переходов из зоны Γ_6^v , расположенной ниже верхней валентной зоны, в зону проводимости симметрии Γ_1^c . Однофотонные переходы между этими состояниями запрещены по симметрии. Аналогичное объяснение получило возрастание в той же спектральной области двухфотонно возбуждаемой фотопроводимости в ZnO³. Существование таких двухфотонных переходов предполагалось также в кристаллах CdS и ZnS^{4,5}, однако не получило подтверждения в дальнейших работах^{6,7}.

В данной работе приводятся результаты исследования спектральных зависимостей ДФП в гексагональных кристаллах ZnO с целью выяснения данного вопроса о влиянии глубоколежащих валентных состояний на ДФП в данном полупроводнике. По двухлучевой методике были измерены спектры ДФП с использованием в качестве модулирующего источника лазера на стекле с нидомом ($\hbar\omega_L = 1,17$ эВ), а также его первой стоксовой компоненты вынужденного комбинационного рассеяния в сжатом водороде ($\hbar\omega_{вкп} = 0,655$ эВ). Эксперименты проводились на автоматическом двухфотонном спектрометре⁸. Измерения с ВКР-лазером проводились на новой установке с поимпульсной регистрацией сигналов, их накоплением и усреднением. Исследуемый монокристалл, имеющий естественную форму гексагональной призмы, был выращен газотранспортным методом и специально не легирован.

Спектры нелинейного поглощения, полученные при 300 К, представлены на рисунке. Сплошные кривые 3 и 4 показывают ход теоретической спектральной зависимости ДФП для разрешенно-запрещенных переходов с учетом кулоновского электрон-дырочного взаимодействия в двухзонной модели⁹, которые удовлетворительно согласуются с экспериментальными спектрами в области $\hbar\omega < 2,9$ эВ. Следует отметить, что данный механизм ДФП доминирует также и в других широкозонных соединениях группы A_2B_6 (CdS, ZnSe, ZnS)^{6,7}.

В экспериментальных спектрах ДФП (кривые 1 и 2 на рисунке), полученных нами, также наблюдается возрастание нелинейного поглощения в коротковолновой части спектра ($\hbar\omega > 2,9$ эВ), причем при одном и том же значении энергии квантов зондирующего света, независимо от применяемого лазерного источника. Двухфотонные же переходы должны начинаться при определенной суммарной энергии поглощаемых квантов, равной энергетическому зазору между зонами Γ_6^v и Γ_1^c . Пороговые значения энергии квантов зондирующего света при изменении $\hbar\omega_L$ для ДФП должны различаться на разницу энергий квантов лазеров (см. вставку *a* на рисунке), что в данном случае составляет $1,17 - 0,655 = 0,505$ эВ.



Спектральные зависимости коэффициента нелинейного поглощения света в ZnO при использовании различных модулирующих лазерных источников: 1 – спектр, полученный при $\hbar\omega_S = 0,655$ эВ (40 MBt/cm^2 , $\Delta t = 20$ нс), 2 – спектр при $\hbar\omega_L = 1,17$ эВ (30 MBt/cm^2), 3 и 4 – соответствующие теоретические спектры ДФП ($E_g = 3,38$ эВ, $E_B = 42$ мэВ). Крестиками показаны значения константы ДФП, выделенные из светоинтенсивностных измерений для спектра 2. На вставках показаны два механизма оптических переходов, соответствующих *a* – ДФП из глубоколежащей валентной зоны Γ_6^v и *б* – ДСП через глубокие локальные состояния, иллюстрирующие различие проявлений этих механизмов при изменении энергии кванта лазерного излучения

В эксперименте не обнаружено сдвига порога дополнительного поглощения в ZnO по шкале $\hbar\omega$ при использовании лазера с другой энергией квантов, что указывает на примесную природу данного канала поглощения. Действительно, в случае двухступенчатого поглощения (ДСП) через глубокие локальные состояния в запрещенной зоне край поглощения определяется равенством $\hbar\omega$ глубине залегания примесного уровня, независимо от энергии квантов модулирующего лазерного излучения, что схематически показано на вставке *б* на рисунке.

Характерно, что полоса примесного ДСП сохраняет свою структуру в обоих спектрах 1 и 2 (провал при $\hbar\omega \approx 3,05$ эВ), хотя ее положение относительно края ДФП существенно изменилось. Наличие структуры полосы ДСП говорит об участии нескольких типов глубоких центров в ее формировании. На влияние примесных эффектов нелинейного поглоще-

ния в данных экспериментах указывают также светоинтенсивностные и поляризационные исследования. Из анализа светоинтенсивностных зависимостей был выделен вклад собственного ДФП в суммарное поглощение (крестики на рисунке), что согласуется с теоретической спектральной зависимостью.

В заключение отметим, что в кристалле ZnO не обнаружено предполагавшегося ранее существенного влияния глубоколежащих валентных зон на формирование спектров ДФП. Возрастание нелинейного поглощения в коротковолновой части спектра, подобное наблюдаемому в^{1,3}, обусловлено, по-видимому, процессами примесного ДСП.

Литература

1. Pensl G. Sol. St. Comm., 1972, 11, 1277.
2. Rossler U. Phys. Rev., 1969, 184, 733.
3. Koren G. Phys. Stat. Sol., 1974, 61, 277.
4. Koren G., Cohen C., Low W. Sol. St. Comm., 1975, 16, 257.
5. Koren G., Yacoby Y. Phys. Rev. Lett., 1973, 30, 920.
6. Балтрамеюнас Р., Вайткус Ю., Гаврюшин В., Дмитренко К. ФТП, 1977, 11, 106.
7. Балтрамеюнас Р., Вайткус Ю., Вицакас Ю., Гаврюшин В., Кубертавичюс В., Рачкайтис Г., Изв. АН СССР сер. физич., 1982, 46, 1442.
8. Гаврюшин В., Наркявичюс В., Балтрамеюнас Р. Приборы и техн. эксперимента, 1978, №1, 186.
9. Бредихин В.И., Гэнкин В.Н. ФТТ, 1974, 16, 1332.

Вильнюсский
государственный университет
им. В.Капсукаса

Поступила в редакцию
21 февраля 1983 г.