

НЕЛИНЕЙНОСТЬ КРАЕВОГО ПОГЛОЩЕНИЯ CdSe

Кулиш Н. Р., Лисица М. П., Малыш Н. И., Булах Б. М.

Исследовано влияние интенсивности лазерного излучения на коэффициент поглощения селенистого кадмия в области края. Показано, что в низкочастотном участке спектра, определяющемся крупномасштабными нарушениями решетки, он постоянен. На урбаховском участке, формирующемся точечными дефектами, поглощение резко падает с ростом интенсивности. В области зона-зонных переходов зависимость коэффициента поглощения от интенсивности объясняется проявлением динамического эффекта Бурштейна—Мосса.

Явление насыщения оптического поглощения в области края фундаментальной полосы обнаружено во многих полупроводниках [1, 2]. Однако ни в одном из известных нам случаев не прослежен характер этого явления при сканировании частоты излучения вдоль хвостов плотности состояний и в глубь разрешенных зон. В данной работе на примере CdSe впервые исследовано влияние интенсивности излучения на характер изменения коэффициента поглощения во всей области фундаментального поглощения. При этом установлено, что в области глубоких хвостов плотности состояний, создаваемых крупномасштабными нарушениями решетки, насыщение поглощения отсутствует; на урбаховском участке поглощения оно наблюдается и обусловлено изменением зарядового состояния точечных дефектов; при зона-зонных переходах реализуется обычный динамический эффект Бурштейна—Мосса. Проанализируем полученные экспериментальные результаты более подробно.

Образцами служили специально не легированные пластинчатые монокристаллы CdSe *n*-типа с удельным темновым сопротивлением порядка 1 Ом·см, толщиной 1—400 мкм. В качестве источника излучения использован лазер на красителе, генерирующий импульсы длительностью 20 нс с полушириной линии ~ 0.05 нм в спектральном участке 600—800 нм. Измерение частотной зависимости линейного коэффициента поглощения $K_{\text{л}}$ производилось с помощью установки КСВУ-23. Полученная зависимость представлена на рис. 1 кривой 1, содержащей три участка.

В области низких частот (участок I) линейное поглощение вызвано переходами в край плотности состояний, сформированный крупномасштабными нарушениями решетки (порами, дислокациями, трещинами и т. д.) [3, 4].

В промежуточной области (участок II) наблюдается экспоненциальное увеличение $K_{\text{л}}$ с ростом энергии фотонов $h\nu$, как это требует правило Урбаха [4, 5], а именно

$$K_{\text{л}} = K_0 \exp \frac{h\nu - E_0}{W}, \quad (1)$$

где K_0 , E_0 , W — константы. На этом участке поглощение определяется квантовыми переходами с участием хвоста плотности состояний, сформированного динамическими (из-за наличия фононов в решетке) и статистическими мелко-масштабными нарушениями периодического потенциала кристаллической решетки (из-за присутствия однозарядных точечных дефектов).

В области высоких частот (участок III) поглощение осуществляется в результате зона-зонных переходов. При этом связь $K_{\text{л}}$ с $h\nu$ (рис. 1, кривая 3) имеет вид [5]

$$K_n = A (\hbar\nu - E_g)^{1/2}, \quad (2)$$

где A — константа, E_g — ширина запрещенной зоны.

Таким образом, за формирование упомянутых выше участков линейного краевого поглощения отвечают различные механизмы взаимодействия света с монокристаллическим CdSe, поэтому можно ожидать, что характер изменения нелинейного коэффициента поглощения с ростом падающей на образец интенсивности I излучения будет различен на каждом из этих участков. Для проверки такого предположения измерялась зависимость пропускания T образцов от I . Из рис. 2, а следует, что в области низких частот T не зависит от I вплоть до порога разрушения образцов. В промежуточной и в области высоких частот (рис. 2, б, в) зависимость $T=f(I)$ содержит отрезки, на которых T практически постоянно. Они разделены интервалом нелинейного увеличения T с ростом I .

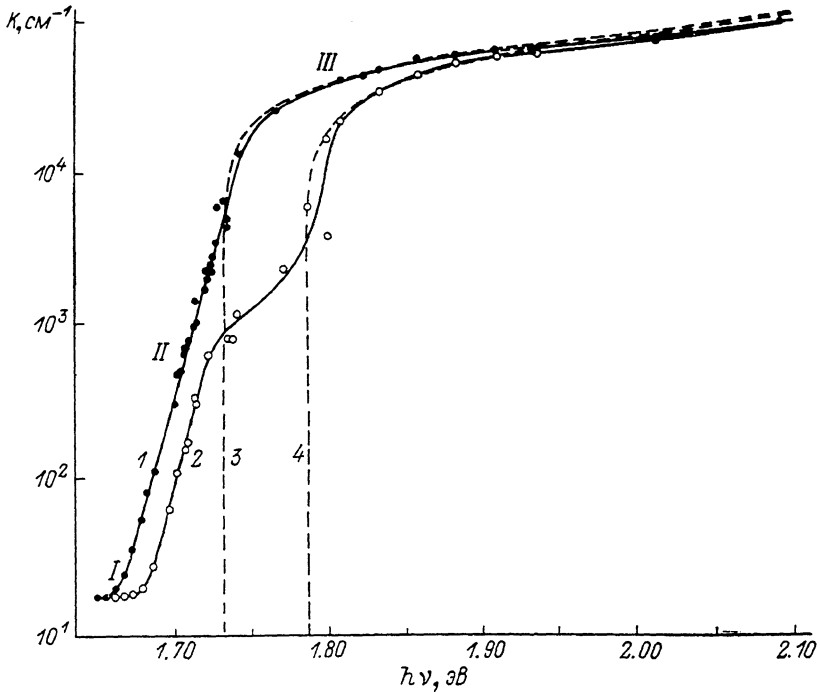


Рис. 1. Частотная зависимость коэффициента поглощения в области краевого поглощения при низких (I) и высоких (II) интенсивностях излучения.

3, 4 — аппроксимация частотного хода кривых формулой (2). Область спектра, определяющаяся: I — крупномасштабными нарушениями решетки, II — точечными заряженными дефектами, III — зона-зонами переходами. Поляризация E ⊥ C.

Установлено, что в области зона-зонах переходов (рис. 1, участок III) нелинейное изменение коэффициента поглощения связано с заполнением электронами дна зоны проводимости и дырками — потолка валентной зоны (динамический эффект Бурштейна—Мосса) [1, 2]. При этом связь коэффициента поглощения K с интенсивностью имеет вид

$$K = K_1 + \frac{K_2}{1 + I/I^*}, \quad (3)$$

где K_1 и K_2 — соответственно нефотоактивная и фотоактивная части коэффициента поглощения K , I^* — интенсивность света, соответствующая порогу просветления. Зависимость пропускания образца толщины d от интенсивности падающего на него излучения в рамках эффективной двухуровневой системы описывается соотношением [6]

$$K_2 \ln \frac{K_n + K_1 T I / I^*}{K_n + K_1 I / I^*} + K_1 \ln T = -K_1 K_n d, \quad (4)$$

где $K_n = K_1 + K_2$. Правомерность применения формул (3), (4) к описанию динамического эффекта Бурштейна—Мосса обоснована в [7].

О реализации этого механизма насыщения в области зона-зонных переходов CdSe свидетельствует неплохое количественное описание формулой (4) (рис. 2, в, штриховая кривая) экспериментально наблюдаемого изменения $T(I)$.

Попытка применения той же формулы к описанию экспериментально измеренной зависимости $T=f(I)$ на участке II не увенчалась успехом, так как здесь реализуется иной процесс поглощения. Урбаховский участок связывают, в частности, с наличием потенциального рельефа на краях разрешенных зон, сформированного тепловым движением атомов решетки и нарушениями периодического потенциала, возникающими из-за наличия в кристалле точечных заряженных дефектов [8, 9]. Поглощение кванта света в этом случае переводит носитель заряда в одну из флуктуаций, причем судьба последнего зависит от того, в какую флуктуацию он попал. Если она рождается точечным дефектом, носитель локализуется вблизи этого дефекта. При попадании носителя в флуктуацию, сформированную тепловым движением атомов решетки, с течением времени он делокализуется и может либо прорекомбинировать, либо перейти в близлежащую разрешенную зону, восполнив дефицит энергии за счет взаимодействия с фононами. Возможно также перемещение носителя к точечному де-

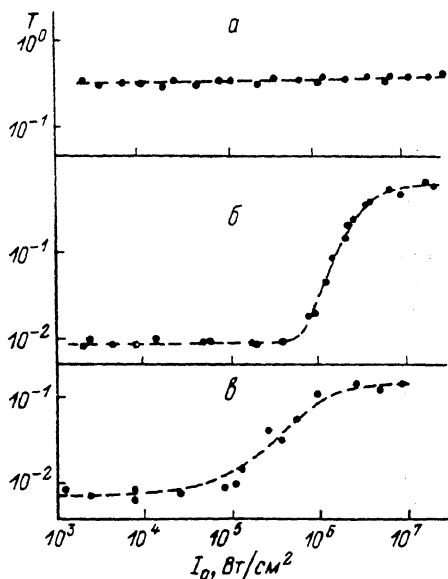


Рис. 2. Зависимость пропускания T от интенсивности I излучения в поляризации $E \perp C$.

$h\nu$, эВ: а — 1,6502, б — 1,6862, в — 1,7403; d , мкм: а — 395, б — 100, в — 1,5.

фекту с зарядом противоположного знака. Два последних процесса приводят к уменьшению кулоновского потенциала точечного дефекта, который при определенной концентрации носителей становится нейтральным [10]. При переходе акцептора (донора) в нейтральное состояние происходит делокализация электрона (дырки), что сопровождается увеличением концентрации свободных носителей. В результате следует ожидать быстрого, почти скачкообразного исчезновения флуктуаций потенциала, сформированного заряженными дефектами. Этот процесс должен сопровождаться таким же быстрым сдвигом экспоненциального участка краевого поглощения в высокочастотную область спектра вследствие исчезновения одной из причин, обуславливающих размытие края собственного поглощения.

Изложенная выше концепция применительно к нелинейному поглощению в той или иной мере ранее обсуждалась в [11, 12] и была использована для создания феноменологической теории нелинейного поглощения света в области урбаховского края [13]. При этом получена аналитическая зависимость пропускания T от интенсивности I , в том числе и для случая гауссовского пространственного распределения излучения в полупроводнике. Для трех наиболее характерных интервалов интенсивности взаимодействующего с образцом излучения она имеет вид

$$T = (1 - R)^2 e^{-K_n d} \quad \text{для } I \leq I_l, \quad (5)$$

$$T = (1 - R)^2 e^{-K_n d} \frac{I_l}{I_h} \left[1 + \frac{K_p}{K_n} \left(\frac{I}{I_l} - 1 \right) \right]^{K_n/K_p} \quad \text{для } I_l \leq I \leq I_h, \quad (6)$$

$$T = (1 - R)^2 e^{-K_n d} \frac{I_l}{I} \left(e^{K_n d} + \frac{I - I_h}{I_l} \right) \quad \text{для } I \geq I_h, \quad (7)$$

где I_l — интенсивность, соответствующая порогу просветления образца, а I_h — интенсивность, требующаяся для его полного просветления, K_n , K_p — коэффициенты поглощения при низкой ($I \leq I_l$) и высокой ($I \geq I_h$) интенсивностях соответственно, d — толщина образца, R — коэффициент отражения.

Формулы (5)—(7) использованы для расчета зависимости T от I для всех частот излучения, попадающих в участок II. Оказалось, что расчетный ход $T=f(I)$ (рис. 2, б, штриховая кривая) вполне удовлетворительно описывает экспериментальную зависимость (рис. 2, б, точки).

Независимость T от интенсивности (рис. 2, а) в наиболее низкочастотной области краевого поглощения (рис. 1, участок I), по-видимому, связана с тем, что в условиях данного опыта концентрация носителей заряда, генерируемых в объеме образца на этих частотах, недостаточна для компенсации заряда, существовавшего на границах крупномасштабных нарушений решетки.

Из рис. 2, б, в следует, что при высоких уровнях возбуждения пропускание образцов CdSe также практически не зависит от интенсивности. Воспользовавшись известными значениями d и T на участках постоянного пропускания, можно определить линейный (при низких I) коэффициент поглощения K_n и соответствующий высоким уровням возбуждения K_p . Частотная зависимость K_n и K_p представлена на рис. 1 (точки). Из него следует, что при переходе от низких к высоким интенсивностям происходит высокочастотное смещение участка краевого поглощения, вызванного наличием точечных дефектов (урбаховский участок края линейного поглощения), и участка, соответствующего зоннозональным переходам. При этом на частотной зависимости K (рис. 1, кривая 2) прослеживаются следующие закономерности. Несколькими увеличивается область поглощения, контролируемая крупномасштабными нарушениями решетки. Последняя переходит в участок экспоненциальной зависимости K , наличие которого связано, по-видимому, с тепловым движением атомов решетки. Далее экспоненциальный участок плавно переходит в корневой (рис. 1, кривая 4).

Таким образом, частотная зависимость коэффициента поглощения при высоких уровнях возбуждения имеет более сложный характер по сравнению с таковым при низких интенсивностях. При этом влияние интенсивности на величину пропускания образцов сильно зависит от механизма, ответственного за формирование того или иного участка в области края собственного поглощения CdSe. Не исключено, что аналогичные закономерности характерны и для других полупроводников.

Список литературы

- [1] Miller A., Miller D. A. B., Smith S. D. // Adv. Phys. 1981. V. 30. N 6. P. 697—800.
- [2] Грибковский В. П. // ЖПС. 1977. Т. 27. В. 4. С. 619—633.
- [3] Цебуля Г. Г., Лисица М. П., Малинко В. Н. // УФЖ. 1967. Т. 12. В. 7. С. 1144—1150.
- [4] Froza A., Selloni A. // Tetrahedrally-bonded amorphous semiconductors. N. Y.—London, 1985. P. 271—285.
- [5] Панков Ж. Оптические процессы в полупроводниках. М., 1973. 456 с.
- [6] Кулиш Н. Р. // Квантовая электроника. Киев, 1987. В. 33. С. 55—62.
- [7] De Rougemont F., Frey R. // Phys. Rev. B. 1988. V. 37. N 3. P. 1237—1244.
- [8] Cody G. D., Tiedje T., Abeles B., Brooks B., Goldstein Y. // Phys. Rev. Lett. 1981. V. 47. N 20. P. 1480—1483.
- [9] Sa-Yakanit V., Glyde H. R. // Comm. Cond. Matt. Phys. 1987. V. 13. N 1. P. 35—48.
- [10] Бонч-Бруевич В. Л. // ЖЭТФ. 1957. Т. 32. N 5. С. 1092—1097.
- [11] Кулиш Н. Р., Мазниченко А. Ф., Малыш Н. И., Булах Б. М. // УФЖ. 1983. Т. 28. В. 40. С. 1553—1555.
- [12] Лисица М. П., Кулиш Н. Р., Малыш Н. И., Булах Б. М. // ФТП. 1985. Т. 19. В. 8. С. 1399—1404.
- [13] Кочелап В. А., Кулиш Н. Р., Малыш Н. И., Соколов В. Н. // ФТП. 1988. Т. 22. В. 5. С. 868—874.