

АНИЗОТРОПИЯ НАВЕДЕННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ AgGaSe_2 ПРИ ДВУХФОТОННОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

© А.А.Бугаев, Г.К.Аверкиева, П.П.Борисков

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия
(Поступила в Редакцию 13 марта 1996 г.
В окончательной редакции 15 мая 1996 г.)

Приводятся результаты исследований наведенного поглощения свободных носителей, возникающих в результате двухфотонного поглощения пикосекундного импульса в объеме тройного полупроводника AgGaSe_2 . Измерения пропускания образца при фиксированной временной задержке (40 ps) между возбуждающим и зондирующим импульсами для ориентации поляризации зондирующего импульса, параллельной и перпендикулярной оптической оси кристалла, обнаружили значительную анизотропию наведенного поглощения, величина которой возрастает с увеличением интенсивности накачки. Качественный анализ полученных зависимостей пропускания показывает, что обнаруженный эффект обусловлен анизотропией изоэнергетических поверхностей валентных подзон.

Одним из наиболее распространенных механизмов нелинейного отклика полупроводников является плазменно-индуцированное изменение комплексной диэлектрической проницаемости среды, обусловленное фотогенерацией свободных носителей (электронов и дырок). Уже в первых экспериментах было обнаружено, что величина этого изменения оказывается достаточной для того, чтобы рассматривать варианты ее практического использования в устройствах пространственного параметрического смещения [1,2] и мультистабильных оптических системах [3,4]. Лишь в простейшем случае изотропного и квадратичного закона дисперсии свободных носителей нелинейный отклик диэлектрической проницаемости может рассматриваться как скалярная величина. Как правило же, условия симметрии полупроводникового кристалла и положение края энергетической зоны в зоне Бриллюэна таковы, что эффективная масса носителей описывается тензорной величиной и их взаимодействие с внешним полем зависит от ориентации поля относительно главных осей тензора. Результатом анизотропии эффективных масс и в общем случае времен релаксации является анизотропия поглощения свободных носителей, обнаруженная в ряде экспериментов для SiC [5,6] и Si [7]. Эта особенность поглощения свободных носителей в сочетании с быстродействием, определяемым их временем жизни, предоставляет дополнительный параметр модуляции в системах обработки оптического сигнала. С этой точки зрения особый интерес вызывает тройной полупроводник AgGaSe_2 , который, как и большинство халькопиритов, обладает двупреломлением (точечная группа

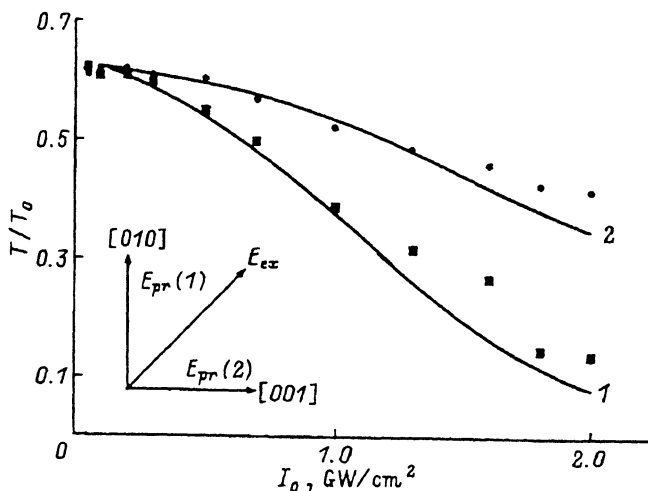
симметрии $\bar{4}2m$) с изотропной точкой дисперсии при $\lambda = 0.82 \mu\text{m}$ и крайним дихроизмом поглощения. Наряду с этим теоретический анализ зонной схемы халькопиритов показывает также значительную анизотропию изоэнергетических поверхностей трех валентных подзон вблизи $k = 0$ [$8-10$].

Для изучения анизотропных свойств наведенного поглощения в AgGaSe_2 нами использовался процесс двухфотонной генерации свободных носителей, возникающий при поглощении мощного лазерного импульса пикосекундной длительности в объеме среды при условии, что энергия светового кванта E_{ph} и ширина запрещенной зоны E_g удовлетворяют неравенству $E_g/2 < E_{\text{ph}} < E_g$. Выбор именно этого способа возбуждения обусловлен тем, что он обеспечивает более однородное распределение концентрации свободных носителей по толщине образца; кроме того, при двухфотонном возбуждении отсутствует влияние нелинейных краевых эффектов (например, динамического эффекта Мосса-Бурштейна) на зависимость концентрации носителей от интенсивности возбуждающего импульса.

В экспериментах использовалась пластина высокоомного AgGaSe_2 ($\rho \approx 10^{10} \Omega \cdot \text{cm}$) толщиной 0.5mm с полированными боковыми поверхностями, которая была вырезана из заготовки, выращенной по методу Бриджмена. Предварительно для улучшения оптических свойств кристалла AgGaSe_2 заготовка в оптической ампуле была подвергнута высокотемпературному отжигу (700°C) в течение 100h . Возбуждение образца производилось с использованием одиночного лазерного импульса от генератора с пассивной синхронизацией мод, который на основной длине волны $1.08 \mu\text{m}$ ($\text{YAl}_2\text{O}_3:\text{Nd}^{3+}$) обеспечивал длительность импульса по полувысоте 27ps . Благодаря однопроходному усилителю энергия одиночного импульса на выходе лазерной установки составляла $\sim 5 \text{mJ}$. Учитывая, что линейный коэффициент поглощения образца на длине волны $1.08 \mu\text{m}$ равен 0.8cm^{-1} , можно полагать, что возбуждение носителей осуществляется преимущественно за счет двухфотонного межзонного перехода.

Ориентация кристаллографических осей была выбрана таким образом, чтобы плоскость (100) кристалла совпадала с боковой поверхностью образца, позволяя тем самым измерять пропускание для двух поляризаций зондирующего лазерного импульса E_{pr} : параллельной и перпендикулярной оптической оси AgGaSe_2 (см. вставку на рисунке). Возбуждающий импульс E_{ex} был поляризован под углом 45° относительно зондирующего. Измерения пропускания образца T производились последовательно для перпендикулярной и параллельной ориентации при фиксированной временной задержке ($\approx 40 \text{ps}$) между возбуждающим и зондирующим импульсами по схеме эксперимента, описанной ранее [$11,12$]. Изменение ориентации поляризации зондирующего импульса достигалось использованием комбинации призмы Глана и полуволновой пластины.

Детальный анализ изменения поглощения в AgGaSe_2 , приведенный в работе [13], показывает, что в области пространственно-временного перекрытия импульсов ($-0.5t_p < t < 0.5t_p$) пропускание образца определяется конкуренцией двухфотонного поглощения и нестационарного энергообмена между импульсами, в результате которого наблюдается как усиление, так и поглощение зондирующего импульса (см. [13]). Для



Зависимость пропускания образца от интенсивности возбуждающего импульса для двух ориентаций поляризации зондирующего импульса: параллельно (1) и перпендикулярно (2) оси c .

Каждая точка эксперимента получена по усредненному значению пяти измерений. На вставке — ориентация кристаллографических осей образца AgGaSe_2 и плоскости поляризации зондирующего E_{pr} и возбуждающего E_{ex} импульсов.

этого диапазона задержек измерения не обнаруживают сколько-нибудь значительного отличия в пропускании для двух ортогональных поляризаций зондирующего импульса. Однако в диапазоне $t > t_p$, в котором присутствует медленно релаксирующая компонента наведенного поглощения, обусловленная поглощением свободных носителей, это отличие становится существенным. Наиболее полное различие в пропускании зондирующего импульса, поляризованного параллельно и перпендикулярно оптической оси кристалла, проявляется в измерениях интенсивностной зависимости пропускания T при фиксированной временной задержке $t \approx 1.5t_p$, результаты которых приведены на рисунке. Из рисунка видно, что по мере увеличения интенсивности накачки пропускание образца уменьшается, причем темп уменьшения оказывается наибольшим для ориентации плоскости поляризации зондирующего импульса, параллельной оси c кристалла. Иными словами, поглощение свободных носителей имеет ярко выраженный анизотропный характер, проявление которого возрастает с ростом интенсивности возбуждения.

Исходя из общего положения о том, что поглощение свободных носителей в основном определяется поглощением свободных дырок, полученные результаты рисунка можно интерпретировать как анизотропию поглощения этих дырок при их переходе между валентными подзонами $V_1(\Gamma_7) - V_3(\Gamma_7)$, вершины которых отделены от дна зоны проводимости энергетическими интервалами 1.83 и 2.29 eV соответственно [14]. Основанием для такой интерпретации могут служить результаты работы [8], в которой с использованием $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -метода выполнен теоретический анализ структуры валентной зоны халькопирита CdGeAs_2 , показывающий значительную анизотропию изоэнергетических поверхностей трех валентных подзон вблизи $\mathbf{k} = 0$ при параболическом законе дисперсии носителей. Поскольку матричный элемент импульса p зависит также и от формы валентных подзон, то это естественным обра-

зом отражается на величине поперечного сечения поглощения σ в виде ее зависимости от ориентации вектора светового поля относительно осей симметрии кристалла. Применительно к халькопириту CdGeAs_2 (p -тип, отсутствие вырождения) был выполнен расчет анизотропии поглощения дырок вблизи $k = 0$, нашедший хорошее экспериментальное подтверждение [8]. К сожалению, сделать аналогичные оценки для случая нашего эксперимента не представляется возможным главным образом из-за отсутствия данных, касающихся структуры валентных подзон в AgGaSe_2 . Кроме того, дополнительным отличием от приближений работы [8] является то, что высокий уровень возбуждения образца, очевидно, приводит к вырождению плазмы свободных носителей (по оценкам $N \geq 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ [13]), а энергия кванта такова, что переходы между подзонами $V_1 - V_3$ имеют место вдали от центра зоны Бриллюэна. Однако, несмотря на указанные различия, по всей видимости, можно полагать, что заключение [8] об анизотропии валентных подзон остается справедливым и для халькопирита AgGaSe_2 . Следуя этому предположению, зависимость на рисунке можно рассматривать как концентрационную. Поскольку коэффициент поглощения дырок пропорционален их концентрации $\alpha_h = \sigma N_h$, которая при двухфотонном возбуждении определяется квадратом интенсивности возбуждающего импульса $N_h = (\beta/2\hbar\omega) \int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t) dt$, нетрудно видеть, что зависимость пропускания образца от интенсивности должна подчиняться соотношению

$$T(I_0) \approx \exp \left[-\frac{\sigma \beta I_0^2 d}{4\hbar\omega} \left(\frac{\pi}{2 \ln 2} \right)^{1/2} t_p \right], \quad (1)$$

где β — коэффициент двухфотонного поглощения, t_p — длительность импульса гауссовой формы по полувысоте, d — толщина образца, I_0 — пиковая интенсивность импульса.

Численная подгонка зависимости типа $T \approx \exp(-a I_0^2)$ к результатам рисунка, представленная в виде сплошных линий, показывает их хорошее соответствие, которое, однако, нарушается в области уровней возбуждения, превышающих $\sim 1 \text{ GW/cm}^2$, где темп падения пропускания замедляется. Наиболее вероятной причиной отклонения $T(I_0^2)$ от ожидаемой зависимости (1) являются процессы излучательной и безызлучательной рекомбинации, которые ограничивают максимально возможную величину концентрации фотовозбужденных носителей, достижимую при заданной длительности и интенсивности импульса накачки. Вместе с тем результаты, представленные на рисунке, показывают, что даже при наличии этого расхождения отношение логарифмов пропускания при перпендикулярной (\perp) и параллельной (\parallel) ориентации поляризации зондирующего импульса $\ln T_{\perp} / \ln T_{\parallel}$ остается примерно постоянным, что позволяет численно оценить анизотропию размерной константы a и сечения поглощения σ согласно соотношениям $(a_{\parallel} - a_{\perp}) / (a_{\parallel} + a_{\perp}) = (\sigma_{\parallel} - \sigma_{\perp}) / (\sigma_{\parallel} + \sigma_{\perp}) = 0.48$ или $a_{\parallel} / a_{\perp} = \sigma_{\parallel} / \sigma_{\perp} = 3.7$. Необходимо отметить, что полученные характеристики анизотропии поглощения являются единственно возможными в условиях настоящего эксперимента, поскольку определение абсолютной величины $\sigma_{\perp, \parallel}$ связано с необходимостью предварительного измерения компоненты

тензора двухфотонного поглощения β , отвечающей геометрии взаимодействия (см. рисунок), равно как и констант рекомбинации. Не вызывает сомнения, что пикосекундная диагностика спектра наведенного поглощения (предпочтительно в диапазоне энергий V_1-V_3 -перехода) позволит выявить длины волн с наибольшим проявлением эффекта анизотропии.

Итак, нами выполнены исследования наведенного поглощения свободных носителей в AgGaSe_2 , возбуждаемых за счет двухфотонного поглощения пикосекундного лазерного импульса в объеме полупроводника. Измерения пропускания образца для двух ориентаций поляризации зондирующего импульса (параллельной и перпендикулярной оптической оси кристалла) обнаружили значительную анизотропию наведенного поглощения, величина которой возрастает с увеличением интенсивности накачки. Качественный анализ полученных зависимостей пропускания показывает, что обнаруженный эффект обусловлен анизотропией изоэнергетических поверхностей валентных подзон.

Авторы признательны Б.П. Захарчене за интерес и поддержку работы, которая, как и [13], выполнена в рамках гранта РФФИ № 95-02-04108-а.

Список литературы

- [1] J.P. Woerdman. *Opt. Commun.* **2**, 4, 212 (1970).
- [2] R.K. Jain. *Opt. Eng.* **21**, 3, 199 (1982).
- [3] H.M. Gibbs, S.L. McCall, T.N. Venkateson, A.C. Gossard, A. Passner, W. Wiegemann. *Appl. Phys. Lett.* **35**, 8, 451 (1979).
- [4] D.A. Miller, S.D. Smith, A. Jonston. *Appl. Phys. Lett.* **35**, 11, 658 (1979).
- [5] B. Ellis, T.S. Moss. *Solid State Commun.* **3**, 3, 109 (1965).
- [6] B. Ellis, T.S. Moss. *Proc. R. Soc. A* **299**, 393 (1967).
- [7] K.J. Schmidt-Tiedemann. *Phys. Rev. Lett.* **7**, 4, 372 (1961).
- [8] H. Kilda. *Phys. Rev.* **B10**, 12, 5082 (1974).
- [9] C. de Alvarez, M.L. Cohen, S.E. Kohu, Y. Petroff, Y.R. Shen. *Phys. Rev.* **B10**, 12, 5175 (1974).
- [10] J.E. Rowe, J.L. Shay. *Phys. Rev.* **B3**, 2, 451 (1971).
- [11] А.А. Бугаев, Т.Ю. Дунаева, В.А. Лукошкин. *ФТТ* **31**, 12, 9 (1989).
- [12] А.А. Бугаев, А.Л. Станкевич. *ФТТ* **34**, 5, 1622 (1992).
- [13] А.А. Бугаев, Г.К. Аверкиева, В.Д. Прочухан. *ФТТ* **37**, 8, 2495 (1995).
- [14] *Semiconductors: Physics of Ternary Semiconductors* / Ed. O. Madelung, M. Schulz, H. Weiss. Berlin (1985) (Landolt-Bernstein Ser.). V. 17.