

УДК 621.378.325

МЕХАНИЗМ НЕЛИНЕЙНОСТИ ПОКАЗАТЕЛЯ ПРЕЛОМЛЕНИЯ КРИСТАЛЛОВ α -SiC (6H)

А. А. Борщ, О. М. Бурин, В. В. Овчар, А. А. Чумак

Дано объяснение нелинейности показателя преломления в кристаллах α -SiC (6H) на частоте излучения рубинового лазера ($\hbar\omega=1.78$ эВ). Нелинейность связана с насыщением прямых переходов свободных электронов между подзонами зоны проводимости. Она обладает малой инерционностью ($\tau \ll 10^{-12}$ с) и сравнительно большой величиной. Экспериментальные зависимости величины нелинейности от интенсивности и частоты имеют те же особенности, что и теоретические. Это позволило оценить величину межзонного матричного элемента оператора импульса и сделать вывод о том, что эффективная масса электрона в верхней подзоне меньше, чем на дне зоны проводимости.

Использование полупроводников как нелинейных сред, например, для динамической голографии [1] позволяет создавать системы с огромным быстродействием. Так, быстродействие, достигнутое при межзонном поглощении света в полупроводниках A_2B_6 , составило 10^{-9} с [2], что является практически предельным при рекомбинационном механизме релаксации. Поэтому для повышения быстродействия перспективным является использование в полупроводниках механизмов нелинейности, связанных с внутрizonными переходами свободных носителей. Это позволило бы уменьшить время релаксации нелинейности еще на три-четыре порядка. В предыдущих работах, где методами самовоздействия [3] и динамической голографии [4] исследовалась нелинейность показателя преломления δn в монокристаллах карбида кремния α -SiC (6H), (15R), показано, что время релаксации нелинейности τ достигает 10^{-12} с. Столь малые τ характерны для процессов релаксации энергии и импульса свободных носителей при их взаимодействии с фононами, примесями или друг с другом. Участие свободных носителей в формировании нелинейности в этих кристаллах подтверждается тем фактом, что ее величина зависит от концентрации примеси азота, определяющей концентрацию электронов в зоне проводимости при комнатной температуре [3].

Целью настоящей работы является выяснение основного механизма нелинейности рефракции в кристаллах α -SiC (6H).

Для конкретизации механизма нелинейности чрезвычайно важной является частотная зависимость δn . Измеренная нами нелинейность рефракции α -SiC (6H) с концентрацией примеси азота $N_A \sim 10^{18}$ см $^{-3}$ на частоте излучения рубинового лазера ($\hbar\omega=1.78$ эВ) оказалась существенно большей ($n_2=4.7 \cdot 10^{-10}$ ед. CGSE), чем на частоте неодимового лазера ($\hbar\omega=1.17$ эВ, $n_2=10^{-12}$ ед. CGSE) и его гармоники ($\hbar\omega=2.34$ эВ, $n_2 \sim 5 \times 10^{-12}$ ед. CGSE). Такая частотная зависимость нелинейности рефракции не может быть объяснена зависимостью рассеяния носителей от их энергии в зоне [5], непараболичностью закона дисперсии [6] или междолинным рассеянием [7]. С другой стороны, известно, что излучение рубинового лазера находится в пределах ширины линии поглощения α -SiC (6H) при поляризации света перпендикулярно гексагональной оси кристалла. Это поглощение исследовалось в работах [8-10] и связывается с прямыми

переходами электронов проводимости в вышележащую зону. Исходя из приведенных выше фактов, мы предположили, что основным механизмом нелинейности на частоте излучения рубинового лазера является насыщение таких переходов. По мере увеличения интенсивности светового потока I электроны будут накапливаться в тех состояниях вышележащей зоны, которые соответствуют условию резонанса

$$\varepsilon_2(\mathbf{p}) - \varepsilon_1(\mathbf{p}) - \hbar\omega = 0, \quad (1)$$

где $\varepsilon_{1,2}(\mathbf{p})$ — закон дисперсии электронов в нижней и верхней зонах проводимости соответственно. Аналогичным образом будут истощаться населенности таких же состояний нижней зоны. Эффект насыщения переходов произойдет тогда, когда населенности состояний, связанных условием (1), начнут выравниваться.

Ниже будет приведена теория этого явления.

1. Расчет нелинейности показателя преломления

Если над дном зоны проводимости имеются незаполненные состояния вышележащей дисперсионной ветви, то такие состояния могут заметно изменить диэлектрическую функцию кристалла вблизи линии поглощения. Их вклад в диэлектрическую функцию равен

$$\varepsilon = -\frac{4\pi}{\hbar} \left(\frac{e}{m\omega}\right)^2 \sum_{\mathbf{p}} \frac{|P_{12}|^2 (f_{1\mathbf{p}} - f_{2\mathbf{p}})}{\omega - \Delta_{\mathbf{p}} - i\gamma(\mathbf{p})}, \quad (2)$$

где P_{12} — межзонный матричный элемент оператора импульса электрона в направлении электрического поля волны \mathbf{E} ($\mathbf{E} \parallel OX$)

$$P_{12} = \left\langle \Psi_{\mathbf{p}}^1 \left| -i\hbar \frac{\partial}{\partial x} \right| \Psi_{\mathbf{p}}^2 \right\rangle,$$

$f_{1,2\mathbf{p}}$ — заселенности состояний \mathbf{p} в нижней и верхней подзонах; $\hbar\Delta_{\mathbf{p}} = \varepsilon_2(\mathbf{p}) - \varepsilon_1(\mathbf{p})$; $\gamma(\mathbf{p})$ — эффективное затухание, определяемое частотой релаксации электронов в верхней и нижней зонах ($\nu_{1,2}(\mathbf{p})$) следующим образом:

$$\gamma(\mathbf{p}) = 1/2 [\nu_1(\mathbf{p}) + \nu_2(\mathbf{p})].$$

Разность населенностей $f_{1\mathbf{p}} - f_{2\mathbf{p}}$ зависит от интенсивности светового потока и может быть найдена из решения кинетических уравнений

$$\begin{aligned} \frac{\partial f_{1,2\mathbf{p}}}{\partial t} = \mp \left(\frac{2\pi e}{m\omega}\right)^2 \frac{I}{\sqrt{\varepsilon_0} c} |P_{12}|^2 (f_{1\mathbf{p}} - f_{2\mathbf{p}}) \times \\ \times \frac{\gamma/\pi}{(\omega - \Delta_{\mathbf{p}})^2 + \gamma^2} - \sum_{\mathbf{p}'} (W_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^{1,2} f_{1,2\mathbf{p}} - W_{\mathbf{p}'\mathbf{p}}^{1,2} f_{1,2\mathbf{p}'}), \end{aligned} \quad (3)$$

где ε_0 — диэлектрическая проницаемость на частоте ω ; $W_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^{1,2}$ — вероятность переходов электронов подзон 1 и 2 при столкновениях с рассеивателями из состояний \mathbf{p} в \mathbf{p}' .

Рассмотрение существенно упрощается, если изменение населенности состояний, находящихся за пределами резонанса, не вносит существенного вклада в изменение диэлектрической функции кристалла на лазерной частоте, и поэтому можно предположить, что за пределами резонанса [11] $f_{1,2\mathbf{p}'} = f_{1,2\mathbf{p}'}^{eq}$, где f^{eq} — равновесная функция распределения.

В этом приближении уравнения (3) легко решаются, и после подстановки значений $f_{1,2\mathbf{p}}$ в (2) получим следующее выражение для действительной части нелинейной добавки к ε :

$$\delta\epsilon' \equiv \text{Re} \{ \epsilon(I) - \epsilon(0) \} = \frac{4\pi}{\hbar} \left(\frac{e}{m\omega} \right)^2 \times \\ \times \sum_p \frac{|p_{12}|^2 (\omega - \Delta_p) (f_{1p}^{e_q} - f_{2p}^{e_q}) \alpha_I \gamma}{[(\omega - \Delta_p)^2 + \gamma^2][(\omega - \Delta_p)^2 + \gamma^2 (1 + \alpha_I)]}, \quad (4)$$

где

$$\alpha_I = \frac{8\pi}{\hbar^2} \left(\frac{e}{m\omega} \right)^2 \frac{|p_{12}|^2 J}{v_1 v_2 \sqrt{\epsilon_0} c}. \quad (5)$$

Здесь мы привели стационарное значение $\delta\epsilon'$, которое устанавливается, когда длительность лазерного импульса значительно превосходит характерные кинетические времена $\nu_{1,2}^{-1}$.

Очевидно, для наших экспериментальных условий имеет смысл говорить лишь о квазистационарном состоянии, поскольку при поглощении света электроны будут накапливаться в верхней подзоне. Установление полного стационара будет описываться теорией, аналогичной [12], учитывающей не только внутризонные переходы, но и медленную релаксацию концентрации электронов верхней подзоны. Возмущения функции распределения за пределами резонансной области будут малы в случае коротких импульсов ($\sim 10^{-11} \div 10^{-12}$ с). В данной работе использовались на-

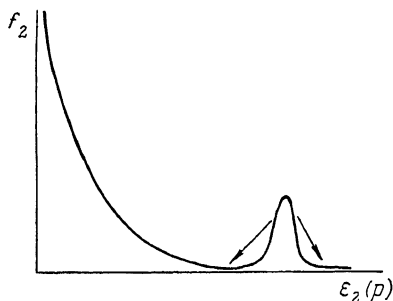


Рис. 1. Вид функции распределения электронов в верхней подзоне (квазистационарный режим).

Стрелками показаны элементарные акты внутризонного рассеяния.

посекундные импульсы. В этом случае при больших уровнях возбуждения концентрации электронов в обеих подзонах могут быть сравнимы. Однако заметного возмущения функции распределения по состояниям, в которые попадают электроны из резонансной области при элементарном акте внутризонного рассеяния, не происходит. Это подтверждается тем экспериментальным фактом, что нелинейность в карбиде кремния безынерционна как в наносекундном [3], так и в пикосекундном [4] режимах возбуждения, т. е. нелинейность исчезает сразу же после окончания импульса. Кроме того, измерения нелинейности в вышеотмеченных режимах возбуждения [3, 4] не дают существенного отличия в величине. Таким образом, в обоих случаях реализуется квазистационарный режим. Возможное объяснение такой ситуации состоит в следующем. По мере истощения нижней подзоны происходит подпитка ее электронами с мелких уровней азота ($E_i \sim 0.06 \div 0.08$ эВ) и восстановление исходной функции распределения в нерезонансной области. Кроме того, если эффективная масса электронов в верхней подзоне меньше, чем в нижней (именно такая ситуация, как показывает анализ, реализуется в карбиде кремния), а кинетическая энергия резонансных электронов верхней подзоны значительно превышает тепловую, то стационарное состояние наступает тогда, когда в верхней подзоне будет значительно больше электронов, чем в нижней. Несложный расчет показывает, что в этом случае отношение их концентраций равно $(m_2^*/m_1^*)^{3/2} \exp \{ \hbar (\Delta_p - \Delta_{p=0}) / T \}$, где $m_{1,2}^*$ — массы плотности состояний, T — температура в энергетических единицах. В квазистационарном состоянии электроны верхней подзоны накапливаются не только в резонансной области, но и в соответствующих энергетических минимумах, куда они переходят вследствие электрон-фононной релаксации (рис. 1). Однако влияние электронов в минимумах на формирование функции распределения в области резонанса будет незначительным, когда число этих электронов значительно меньше, чем при условии полного

стационара, приведенного выше. Только в этом случае справедлива использованная нами выше аппроксимация $f_{1, 2p'} \approx f_{1, 2p'}^{eq}$.

При получении (4) мы также учли, что в равновесном состоянии имеет место тождество

$$W_{pp'}^{1, 2f^{eq}} = W_{p'p}^{1, 2f^{eq}}$$

Полагая затухание γ малым параметром ($\gamma, \gamma \sqrt{\alpha_I} \ll T/\hbar$), (4) можно переписать в более простом виде

$$\delta\varepsilon' = -\frac{1}{\hbar} \left(\frac{2\pi e}{m\omega} \right)^2 \frac{\partial}{\partial \omega} \sum_p |p_{12}|^2 f_{1p}^{eq} \gamma (\sqrt{1 + \alpha_I} - 1) \delta(\omega - \Delta_p). \quad (6)$$

В (6) мы пренебрегли величиной f_{2p}^{eq} , поскольку в верхней подзоне практически при любых температурах отсутствуют носители тока. Из (6) следует, что в случае малых интенсивностей ($\alpha_I \ll 1$) $\delta\varepsilon' \sim I$. При больших интенсивностях ($\alpha_I \gg 1$) имеет место корневая зависимость $\delta\varepsilon'$ от интенсивности светового потока $\delta\varepsilon' \sim \sqrt{I}$. Последний случай соответствует насыщению поглощения ($\delta\varepsilon'' \rightarrow \text{const}$), рассматривавшемуся в вышеупомянутой работе [11]. Условие $\alpha_I \gg 1$ означает, что населенности состояний, между которыми происходят прямые переходы, выравниваются.

Величину $\delta\varepsilon'$ можно определить, просуммировав в правой части (6). Задача усложняется тем, что закон дисперсии энергии носителей анизотропен, причем главные значения тензора эффективной массы в верхней зоне неизвестны. Но величина и знак $\delta\varepsilon'$ существенно зависят от комбинаций этих констант, входящих в аргумент δ -функции в (6), следующим образом:

$$\delta(\omega - \Delta_p) \equiv \delta(\omega - \Delta_0 - \mu_{\parallel} p_{\parallel}^2 - \mu_{\perp} p_{\perp}^2),$$

где

$$\Delta_0 = \Delta_{p=0}, \quad \mu_{\parallel} = \frac{1}{2\hbar} \left(\frac{1}{m_{\parallel}^{(2)}} - \frac{1}{m_{\parallel}^{(1)}} \right), \quad \mu_{\perp} = \frac{1}{2\hbar} \left(\frac{1}{m_{\perp}^{(2)}} - \frac{1}{m_{\perp}^{(1)}} \right),$$

$m_{\parallel}^{(1, 2)}, m_{\perp}^{(1, 2)}$ — значения электронной массы вдоль и поперек гексагональной оси.

Знаки параметров $\mu_{\parallel}, \mu_{\perp}$ определяют знак $\delta\varepsilon'$. Если $\mu_{\parallel}, \mu_{\perp} > 0$ (при этом ω всегда должна превышать Δ_0), то знак $\delta\varepsilon'$ можно легко определить после интегрирования в (6) по $|\mathbf{p}|$. При этом заметим, что

$$f_{1, p}^{eq} = f_1^{eq} [\varepsilon_1(\mathbf{p})] \equiv f_1^{eq} [\varepsilon_1(p^2, \cos^2 \theta)], \quad v_{1, 2}(\mathbf{p}) \equiv v_{1, 2}(p^2, \cos^2 \theta).$$

После интегрирования получим, что знак $\delta\varepsilon$ будет таким же, как и у выражения

$$-\frac{\partial}{\partial \omega} p_{\omega} f_1^{eq} [\varepsilon_1(p_{\omega}^2, \cos^2 \theta)] [v_1^{-1}(p_{\omega}^2, \cos^2 \theta) + v_2^{-1}(p_{\omega}^2, \cos^2 \theta)], \quad (7)$$

где

$$p_{\omega} = [(\omega - \Delta_0)/(\mu_{\parallel} \cos^2 \theta + \mu_{\perp} \sin^2 \theta)]^{1/2}.$$

При интегрировании мы пренебрегли зависимостью $|p_{12}|^2$ от \mathbf{p} , что справедливо для разрешенных переходов, и положили $\alpha_I \ll 1$. Если электроны рассеиваются на акустических фононах деформационного потенциала, то $v_{1, 2}^{-1} \sim 1/p$. Если же играют роль оптические или междолинные фононы, то имеет место еще более резкое убывание $v_{1, 2}^{-1}$ с ростом p . Фононные механизмы рассеяния являются основными при комнатных и более высоких температурах, поэтому произведение $p v_{1, 2}^{-1}(p^2, \cos^2 \theta)$ или не зависит от p , или уменьшается с его ростом. Поскольку $(\partial f_1^{eq}/\partial p) < 0$, то выражения (7) и, следовательно, (6) положительны, т. е. $\delta\varepsilon > 0$. Именно такая ситуация имеет место на эксперименте, результаты которого приведены в разделе 2.

Случай $\mu_{\parallel}, \mu_{\perp} < 0$ аналогичен рассмотренному с той разницей, что здесь $\omega < \Delta_0$, и выражение для p_{ω}^2 принимает несколько иной вид

$$p_{\omega} = [(\Delta_0 - \omega) / |\mu_{\parallel} \cos^2 \theta + \mu_{\perp} \sin^2 \theta|]^{1/2}.$$

Поскольку здесь $(\partial p_{\omega} / \partial \omega) < 0$, то и $\delta \varepsilon < 0$.

Несколько более сложной является ситуация, когда одно из чисел $\mu_{\parallel}, \mu_{\perp}$ отрицательно. Положим для определенности $\mu_{\parallel} > 0, \mu_{\perp} < 0$. Из предыдущего видно, что важную роль играет отклонение частоты ω от Δ_0 , т. е. знак величины $\omega - \Delta_0$. Его нетрудно установить, для чего необходимо вычислить мнимую часть ε при $I=0$. $\text{Im } \varepsilon (I=0)$ определяет форму линии поглощения.

Несложный анализ, который мы здесь опускаем, показывает, что максимум поглощения будет в рассматриваемом случае при $\omega = \Delta_0$. Частота используемого нами лазера меньше центральной, т. е. $\omega - \Delta_0 < 0$. Теперь несложно проинтегрировать (6) по p_{\perp} . После этого оказывается, что знак $\delta \varepsilon$ определяется знаком величины

$$-\frac{\partial}{\partial \omega} e^{(\omega - \Delta_0)/2Tm_{\perp}^{(1)}} |\mu_{\perp}| [v_1^{-1} (p_{\omega}^2, \cos^2 \theta) + v_2^{-1} (p_{\omega}^2, \cos^2 \theta)],$$

$$p_{\omega}^2 = [p_{\parallel}^2 (|\mu_{\perp}| + \mu_{\parallel}) + (\omega - \Delta_0) / |\mu_{\perp}|],$$

которая при тех же предположениях, что и раньше, отрицательна. Аналогично доказывается, что $\delta \varepsilon' < 0$ при $\mu_{\parallel} < 0, \mu_{\perp} > 0$.

Таким образом, нелинейная добавка $\delta \varepsilon'$ положительна только тогда, когда $m_{\parallel}^{(1)} > m_{\parallel}^{(2)}, m_{\perp}^{(1)} > m_{\perp}^{(2)}$.

2. Экспериментальные результаты и численные оценки

Для проверки справедливости проявления этого механизма в кристаллах карбида кремния мы сняли зависимость величины нелинейной добавки к показателю преломления δn от интенсивности. При этом нами использована методика записи тонких динамических фазовых голограмм. Запись осуществлялась с помощью излучения рубинового лазера по

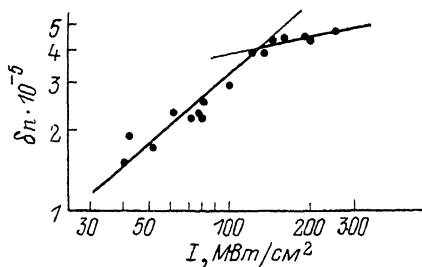


Рис. 2. Зависимость нелинейной добавки к показателю преломления δn в кристалле α -SiC(6H) от интенсивности возбуждающего излучения рубинового лазера.

стандартной двухлучевой методике с углом схождения пучков порядка $40'$. В этом случае, зная интенсивность m -го порядка дифракции по формуле теории Рамана—Ната для дифракции на тонкой фазовой решетке

$$I_m = I_0 \cdot (2\pi d n d / \lambda),$$

(I_0 — интенсивность записывающего излучения; j_m — функция Бесселя порядка m при значении аргумента, равного набегу фазы на толщине кристалла d), можно определить глубину модуляции показателя преломления δn . При этом соблюдалось условие малости аргумента функции Бесселя.

На рис. 2 представлена зависимость δn от интенсивности возбуждения для кристалла α -SiC(6H) ($N_d \sim 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$). Основной особенностью приведенной кривой является линейная зависимость $\delta n(I)$ при малых интенсивностях и близкая к корневой при больших, как и следует из формулы (6). Кроме того, наблюдаемая частотная зависимость величины нелинейности в кристаллах карбида кремния, о которой говорилось

в начале статьи, также свидетельствует в пользу данного механизма нелинейности.

Мы также исследовали температурную зависимость величины нелинейности δn . При изменении температуры от комнатной до азотной ее величина уменьшается на порядок. Качественно этот результат согласуется с приведенной теорией, поскольку в таком температурном интервале резко уменьшается число свободных носителей. Однако численный расчет провести достаточно трудно из-за неизвестной зависимости частот $\nu_1, 2$ от температуры.

В разделе 1 мы получили лишь функциональную зависимость нелинейности от интенсивности света в пределе малых и больших значений I . Оценить δn по порядку величины, используя непосредственно формулу (6) ($\delta n \approx \delta \epsilon' / 2 \sqrt{\epsilon_0}$), невозможно, поскольку неизвестны некоторые входящие в нее параметры. Однако грубая численная оценка может быть легко получена, если заменить в правой части (6) производную $\partial/\partial \omega$ на $1/2 T m^{(1)\mu}$, после чего вынести за знак суммы функции $\gamma(\mathbf{p})$ и $\alpha_I(\mathbf{p})$, заменив в них аргументы характерными значениями. После этого легко получим в случае $\alpha_I \ll 1$

$$\delta \epsilon' \sim \frac{\gamma \alpha_I}{4 T m^{(1)\mu}} | \text{Im } \epsilon(I=0) |. \quad (8)$$

Величина $| \text{Im } \epsilon(I=0) |$ экспериментально определяется по коэффициенту поглощения света κ ($\kappa = \omega/c \sqrt{\epsilon_0} \cdot \text{Im } \epsilon(I=0)$), а параметр α_I — по излому на экспериментальной кривой $\ln \delta n(I)$. Этот излом соответствует потоку $I = I_s$, при котором $\alpha_{I_s} \sim 1$. Поэтому α_I можно заменить величиной I/I_s . В результате для нелинейного показателя преломления получим

$$\delta n \sim \frac{\nu_1 + \nu_2}{16 T m^{(1)\mu}} \frac{c}{\omega} \kappa \frac{I}{I_s}. \quad (9)$$

Положив в (9) $\nu_1, \nu_2 \sim 10^{13} \text{ с}^{-1}$, $\kappa \sim 5 \text{ см}^{-1}$, $I = I_s$, $\omega = 2.7 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $m^{(1)\mu} = 1/8\hbar$ (что соответствует $m^{(2)} = 0.8 m^{(1)}$), получим для комнатной температуры $\delta n \sim 1.3 \cdot 10^{-5}$. Эта величина близка к экспериментальной, что еще раз свидетельствует в пользу предложенного механизма нелинейности. Таким образом, проведенные исследования показали, что основным механизмом нелинейности показателя преломления кристаллов $\alpha\text{-SiC}$ (6H) является насыщение переходов свободных носителей между подзонами зоны проводимости.

В заключение отметим, что, используя формулу (5), можно оценить величину матричного элемента оператора импульса. Для этого используем условие $\alpha(I_s) \sim 1$. В нашем случае $I_s \sim 10^8 \text{ Вт/см}^2$. Отсюда получим $| p_{12} |^2 \sim 10^{-38} \text{ г}^2 \cdot \text{см}^2/\text{с}^2$.

Список литературы

- [1] Винецкий В. Л., Кухтарев Н. В., Одулов С. Г., Соскин М. С. // УФН. 1979. Т. 129. № 1. С. 113—137.
- [2] Борщ А. А., Бродин М. С., Овчар В. В., Одулов С. Г., Соскин М. С. // Письма в ЖЭТФ. 1973. Т. 18. № 11. С. 679—682.
- [3] Борщ А. А., Бродин М. С., Волков В. И. // ЖЭТФ. 1977. Т. 72. № 3. С. 938—942.
- [4] Борщ А. А., Бродин М. С., Волков В. И. // Письма в ЖТФ. 1979. Т. 5. № 4. С. 235—239.
- [5] Debye P. K., Paranjape V. V. // Phys. Rev. B. 1973. V. 8. N 4. P. 1514—1522.
- [6] Tzoar N., Gersten J. L. // Phys. Rev. B. 1978. V. 4. N 10. P. 3540—3547.
- [7] Guba S., Tripachi V. K. // Phys. St. Sol. (a). 1972. V. 13. N 5. P. 681—684.
- [8] Biederman E. // Sol. St. Comm. 1965. V. 3. N 2. P. 343—345.
- [9] Дубровский Г. Б., Радованова Е. И. // ФТТ. 1969. Т. 11. № 3. С. 680—684.
- [10] Dubrovskii G. B., Lerneva A. A., Radovanova E. I. // Phys. St. Sol. (b). 1973. V. 57. N 1. P. 423—431.
- [11] James R. B., Smith D. L. // Phys. Rev. Lett. 1979. V. 42. N 22. P. 1495—1498.
- [12] Паршин Д. А., Шабаев А. П. // ЖЭТФ. 1987. Т. 92. № 4. С. 1471—1484.

Институт физики АН УССР
Киев

Поступило в Редакцию
12 июля 1988 г.
В окончательной редакции
13 февраля 1989 г.