

Распространение неравновесных фононов в монокристаллическом ZnTe

© Т.И. Галкина, А.Ю. Клоков, А.И. Шарков[¶], Ю.В. Коростелин, В.В. Зайцев

Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук,
119991 Москва, Россия

(Получена 2 октября 2002 г. Принята к печати 2 октября 2002 г.)

Исследовано распространение неравновесных акустических фононов в монокристаллическом ZnTe при гелиевых температурах как при оптической генерации фононов, так и при генерации фононов нагревом металлической пленки. Для ориентации [110] ZnTe зарегистрирован приход продольных и поперечных акустических фононов, хорошо разрешаемых особенно в случае генерации фононов нагревом металлической пленки. Обнаружена „засветка“ болометра излучением материала ZnTe с постоянной времени $\tau \sim 90$ нс, что, по-видимому, можно связать с люминесценцией кислородных комплексов, поскольку времена жизни других комплексов и связанных экситонов намного короче.

1. Введение

Соединения II–VI группы еще в середине прошлого века привлекли внимание при их использовании в качестве пленочных фотоприемников в видимой области спектра; затем пришла эпоха их широкого использования в акустоэлектронике, оптоэлектронике и лазерной технике. В последние годы сообщалось, что тонкие пластины ZnTe ориентации [110] нашли применение как когерентные электрооптические сенсоры с шириной полосы детектирования до 40–50 ТГц [1,2].

В этой связи тепловые свойства ZnTe должны быть хорошо изучены с целью улучшения условий рассеивания тепла, что в свою очередь позволит уменьшить деградацию приборов на основе ZnTe и, возможно, улучшить их временные характеристики.

В литературе отсутствуют данные об изучении неравновесного теплопереноса в ZnTe, исключая работу [3], где приведены предварительные результаты первых исследований. Цель настоящей работы состояла в получении сведений о характере распространения неравновесных акустических фононов, возбуждаемых различными способами в монокристаллическом ZnTe.

2. Эксперимент

Для исследования распространения неравновесных фононов были использованы образцы монокристаллического ZnTe ($\rho \sim 10\text{--}20$ Ом·см) в виде пластин ориентацией [110] с размером 6×6 мм² и толщиной 970 мкм [4].

Для дополнительной характеристики материала была измерена фотолюминесценция образца, тепловые свойства которого были исследованы.

Измерение спектров фотолюминесценции проводилось при температуре 2 К. Оптическое возбуждение осуществлялось аргоновым лазером с квантом энергии 2.41 эВ (514.5 нм). Спектр анализировался двойным монохроматором с разрешением 0.1 мэВ. Сигнал с ФЭУ

регистрировался с помощью узкополосного усилителя с синхронным детектором.

На рис. 1 представлен спектр фотолюминесценции монокристалла ZnTe при $T = 2$ К. Видно, что помимо собственного излучения, обусловленного свободным экситоном (FE , $FE\text{-}LO$), в спектре фотолюминесценции проявляются линии, связанные с рекомбинацией экситона, локализованного на нейтральных доноре (D^0X) и четырех акцепторах A^0X : Cu, Li, Ag и k (не идентифицированный акцептор) [5]. В последнем случае, помимо основных линий A^0X (где $A = \text{Cu, Li, Ag}$), видны также так называемые двухдырочные переходы, обозначенные на рис. 1 $2S A$ ($A = \text{Cu, Li, Ag, } k$). В длинноволновой части спектра проявляется структура из четырех линий, коротковолновая из которых (K_0) соответствует бесфононному переходу, а три остальные являются LO -фононными повторениями K_0 . Согласно [6], K_0 обусловлена излучением сложного дефекта, в состав которого входит вакансия Zn.

На вставке к рис. 1 приведен спектр фотолюминесценции около 1.9 эВ, обусловленной изучением экситона, локализованного на изоэлектронной примеси O_{Te} (кислород в подрешетке Te) [7]. Интенсивность излучения в максимуме примерно в 10^4 раз меньше интенсивности линии A^0X . Однако в отличие от узкой линии A^0X спектр O_{Te} простирается в широком спектральном диапазоне, что обусловлено сильным электрон-фононным взаимодействием (наблюдается испускание LO -, LA -, и TA -фононов) [7]. Спектр типичен для объемных кристаллов ZnTe, например, см. спектр катодолюминесценции [4] для образцов, выращенных в аргоне.

Исследование распространения неравновесных фононов в ZnTe проводилось с помощью методики тепловых импульсов. Схема эксперимента и основные процессы с неравновесными фононами показаны на рис. 2. Неравновесные фононы генерируются в образце S в результате импульсного возбуждения. В представленной серии экспериментов таким возбуждением являлось фотовозбуждение светом с энергией квантов больше ширины запрещенной зоны исследуемого материала ($P1$),

[¶] E-mail: shark@sci.lebedev.ru

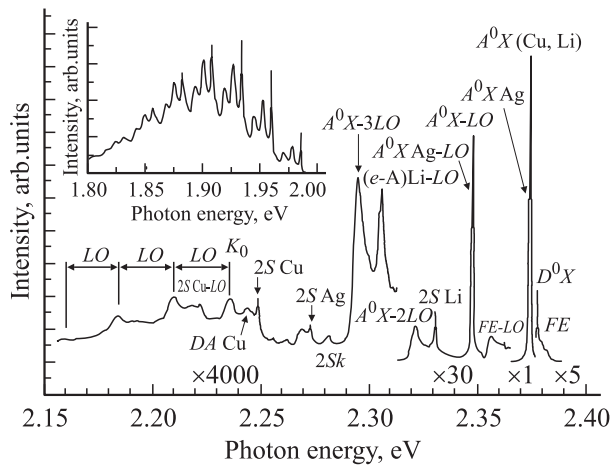


Рис. 1. Спектр фотолюминесценции ZnTe при $T = 2$ К, плотность возбуждения аргоновым лазером ($\lambda = 514.5$ нм) 10 Вт/см². На вставке — спектр излучения экситона, локализованного на O_{Te} .

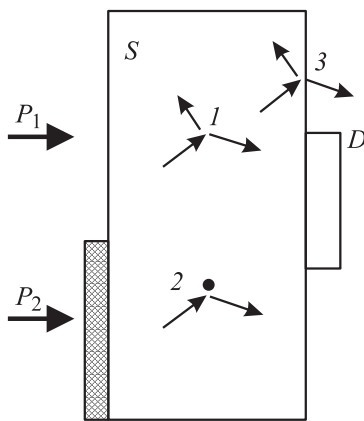


Рис. 2. Основные процессы, происходящие с генерируемыми акустическими фононами: 1 — спонтанный распад, 2 — упругое рассеяние, 3 — эффекты на границах образца.

когда фононы рождаются непосредственно в образце в результате остывания горячих носителей и безызлучательной рекомбинации или в результате нагрева лазерным импульсом металлической пленки, нанесенной на образец (P_2). Рожденные фононы распространяются по образцу, испытывая процессы спонтанного ангармонического распада (1), упругого рассеяния на дефектах решетки (2) и т.д. Поглощаясь в детекторе D , они образуют сигнал. По виду разрешенного по времени сигнала судят об особенностях процессов, происходящих с неравновесными фононами и о режиме их распространения.

Были использованы фотовозбуждение поверхности образца импульсами азотного лазера ЛГИ-21 ($\lambda = 337$ нм, $\tau_{1/2} = 7.5$ нс) и нагрев этими импульсами золотой пленки толщиной 150 нм, напыленной на поверхность образца.

Для детектирования прихода неравновесных фононов в геометрии „на прохождение“ на противоположную поверхность образца напылялся сверхпроводниковый болометр, выполненный на основе гранулированного алюминия [8]. Система регистрации была построена на основе широкополосного предусилителя РУ3-33 и стробоскопического преобразователя напряжения В9-5, управляемого от компьютера. Временное разрешение системы регистрации составляло около 5 нс.

2.1. Фотовозбуждение

На рис. 3 сплошной линией представлен типичный отклик болометра при фотовозбуждении поверхности ZnTe. Видно, что отклик состоит из нескольких пиков, накладывающихся друг на друга.

Первый из пиков, который не имеет задержки начала переднего фронта по времени, вызван попаданием на болометр импульса света. Это не может быть вызвано прохождением через кристалл света от лазерного импульса возбуждения, поскольку энергия квантов света азотного лазера ($\hbar\nu = 3.7$ эВ) больше ширины запрещенной зоны ZnTe ($E_g = 2.4$ эВ), вследствие чего коэффициент поглощения света в ZnTe для этой длины волны $\sim 10^5$ см⁻¹, так что в кристалле толщиной 970 мкм прохождение света отсутствует. В то же время, как было сказано выше, при облучении ZnTe возникает люминесценция в „красной“ области спектра, которая способна проходить сквозь кристалл. Анализ показывает, что спад сигнала первого пика является экспоненциальным ($\sim \exp(-t/\tau)$), с характерным временем $\tau = 90$ нс (пунктирная кривая на рис. 3); мы полагаем, что этот сигнал может быть вызван излучением кислородного комплекса [9], поскольку времена жизни других комплексов и связанных экситонов намного короче [7].

Вид фононной части отклика, полученный путем вычитания из суммарного сигнала экспоненты, показан

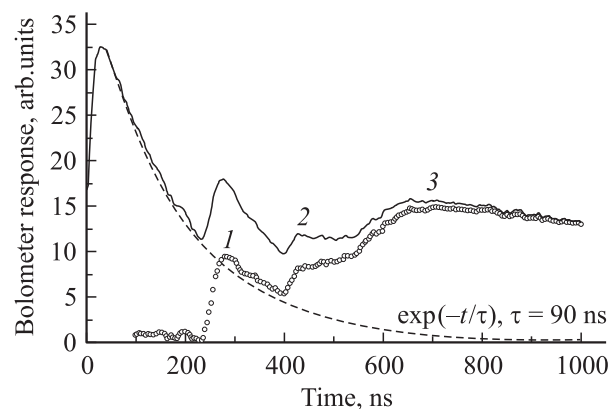


Рис. 3. Сплошная линия — типичный отклик болометра при фотовозбуждении поверхности ZnTe импульсами азотного лазера. Пунктиром показан вид экспоненциального спада с характерным временем $\tau = 90$ нс. Кружками показана „фононная“ составляющая отклика. Цифрами обозначены пики прихода: 1 — LA-, 2 — FTA-, 3 — STA-фононов.

на рис. 3 кружками (похожий спектр при другом уровне возбуждения приведен в [3]). Цифрами на фоновой части отклика обозначен приход фононов разных поляризаций. Пик 1, начинающийся при $t = 235$ нс, соответствует приходу продольных акустических (*LA*) фононов, имеющих скорость распространения 3.88 мкм/нс. Затем следует пик 2, начинающийся при $t = 420$ нс, что соответствует приходу быстрых поперечных (*FTA*) фононов, имеющих скорость распространения 2.35 мкм/нс. Интересно отметить то, что величина этого пика меньше, чем пика, соответствующего приходу *LA*-фононов, хотя плотность состояний *FTA*-фононов больше, чем *LA*-фононов в 4 раза. Следующий далее пик 3, который имеет довольно диффузный вид, вызван приходом *STA*-фононов, имеющих скорость распространения 2.18 мкм/нс.

2.2. Нагрев золотой пленки

На рис. 4 сплошными линиями представлены отклики болометра, полученные при использовании в качестве генератора фононов золотой пленки, нанесенной на поверхность ZnTe и нагреваемой импульсами лазера. Виден ряд отличий от случая генерации фононов при помощи фотовозбуждения поверхности ZnTe. Во-первых, разумеется, отсутствует пик, вызванный приходом излучения люминесценции. Затем видно, что пики, соответствующие приходу *LA*- и *FTA*-фононов, гораздо более резкие. Это вызвано тем, что в случае использования в качестве генератора фононов золотой пленки, нагреваемой импульсами лазера, генерируются фононы более низкочастотные ($\nu \sim 1.5$ ТГц), чем в случае фотовозбуждения ($\nu \sim 3.1$ ТГц). Вследствие существенной зависимости длины свободного пробега фононов от частоты фононов: $\tau = 1/(A_{scat} \cdot \nu^4)$, где ν — частота фононов, A_{scat} — константа упругого рассеяния, — эти, более низкочастотные, фононы рассеиваются существенно меньше, что и приводит к более резким откликам.

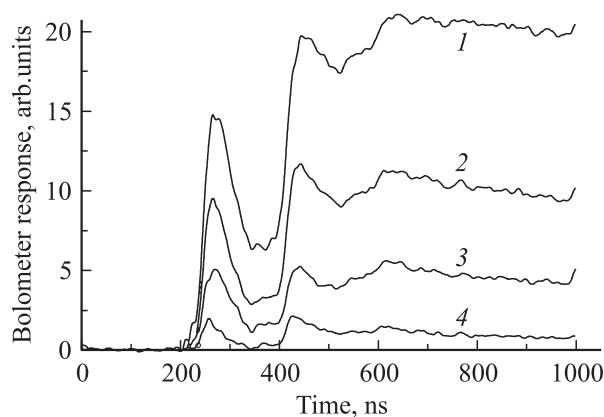


Рис. 4. Отклики болометра при нагреве импульсами азотного лазера золотой пленки, напыленной на поверхность ZnTe при различных энергиях в импульсе $E = 1.0, 0.5, 0.25$ и 0.14 мкДж для кривых 1, 2, 3 и 4 соответственно.

Можно заметить, кроме того, что пики становятся все более резкими при увеличении энергии возбуждения. Казалось бы, это находится в противоречии с предыдущим утверждением, поскольку при увеличении энергии возбуждения пленка разогревается до больших температур и, соответственно, генерирует фононы больших энергий, которые должны рассеиваться более интенсивно. Вместе с тем такое поведение отклика может быть вызвано тем, что фононы, генерируемые во всем диапазоне использованных энергий возбуждения, имеют длины свободного пробега, сравнимые или превышающие толщину кристалла. В этом случае форма пиков определяется не рассеянием фононов, а тем как пленка, остывая, генерирует фононы. Сильнее нагретая пленка, как было показано в [10], имеет большую скорость остывания, что приводит к уменьшению длительности пиков *LA*- и *FTA*-фононов.

Интересно отметить также, что при использовании в качестве генератора фононов импульсно-нагреваемой металлической пленки появляется зависимость относительной амплитуды пиков: при увеличении энергии возбуждения амплитуда пика, соответствующего *FTA*-фононам, вначале равная амплитуде пика, соответствующего *LA*-фононам, становится существенно больше. Еще сильнее меняется амплитуда третьего пика. Если при меньших энергиях его амплитуда меньше амплитуд *LA*- и *FTA*-пиков (рис. 4, кривая 4), то при повышении энергии он сначала сравнивается с ними, а потом становится больше. Как нам представляется, это может быть объяснено либо уменьшением доли *LA*-фононов в результате процессов распада, интенсивность которых возрастает с увеличением частоты фононов, либо образованием „горячего фононного пятна“ [11,12].

Анализ экспериментальных откликов путем сравнения их с рассчитанными методом Монте-Карло [13], как это было сделано, например, для CdTe [14], требует знания констант распада фононов в ZnTe, которые в настоящее время в литературе отсутствуют.

3. Заключение

С помощью техники тепловых импульсов исследовано распространение неравновесных акустических фононов (как более высокочастотных в случае оптического возбуждения, так и сравнительно низкочастотных в случае нагрева металлической пленки) в образце монокристаллического ZnTe. Зарегистрирован проход продольных (*LA*) и поперечных (как *FTA*, так и *STA*) фононов. Хорошее разрешение фононов разных поляризаций является убедительным доказательством высокого совершенства монокристалла ZnTe.

Авторы благодарны В.П. Мартовицкому за проведение рентгенографических исследований и Ю.В. Клевкову за полезные замечания.

Работа была поддержана Российским фондом фундаментальных исследований, проект № 02-02-17392 и Комиссией Российской академии наук по работе с молодежью, грант № 24 „6-го конкурса-экспертизы“.

Список литературы

- [1] Q. Wu, X.-C. Zhang. *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 1285 (1997).
- [2] A. Leitenstörter, S. Hunshe, J. Shah, M.C. Nuss, W.H. Кнох. *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 1516 (1999).
- [3] Т.И. Галкина, А.Ю. Клоков, А.И. Шарков, V.S. Bagaev, E.E. Onishchenko, V.V. Zaitsev, V.G. Ralchenko, V.A. Dravin, R.A. Khmel'nitskii, A.A.Gippius. *Physica B*, **316–317**, 243 (2002).
- [4] Yu.V. Korostelin, V.I. Kozlovsky, P.V. Shapkin. *J. Cryst. Growth*, **214/215**, 870 (2000).
- [5] H. Venghaus, P.J. Dean. *Phys. Rev. B*, **21**, 1596 (1980).
- [6] B.A. Wilson, C.E. Bonner, R.D. Feldman, R.F. Austin, D.W. Kisker, J.J. Krajewski, P.M. Bridebaugh. *J. Appl. Phys.*, **64**, 3210 (1988).
- [7] P. Dean, D.C. Herbert. In: *Excitons. Topics in Current Physics*, ed. by K. Cho (Berlin, Springer, 1979) v. 14, p. 55.
- [8] А.Ю. Блинов, М.М. Бонч-Осмоловский, Т.И. Галкина, Б.А. Данильченко, С.Х. Рожко. Кр. сообщ. по физике ФИАН, **7**, 31 (1989).
- [9] Y. Burki, W. Czaja, V. Capozzi, P. Schwendimann. *J. Luminesc.*, **60–61**, 4 (1994).
- [10] А.И. Шарков, А.Ю. Клоков, Т.И. Галкина. *ФТТ*, **43**, 346 (2001).
- [11] М.М. Бонч-Осмоловский, Т.И. Галкина, А.Ю. Клоков, А.Ф. Plotnikov, YuYu. Pokrovskii, A.I. Sharkov. *Sol. St. Commun.*, **92**, 203 (1994).
- [12] Д.В. Казаковцев, И.Б. Левинсон. *ЖЭТФ*, **88**, 2228 (1985).
- [13] М.М. Бонч-Осмоловский, Т.И. Галкина, А.Ю. Клоков, А.И. Шарков, Д.В. Казаковцев. *ФТТ*, **38**, 1051 (1996).
- [14] А.И. Шарков, Т.И. Галкина, А.Ю. Клоков, Ю.В. Клевков. *ФТТ*, **45**, 159 (2003).

Редактор Л.В. Беляков

Propagation of nonequilibrium acoustic phonons in ZnTe single crystals

*T.I. Galkina, A.Yu. Klokov, A.I. Sharkov,
Yu.V. Korostelin, V.V. Zaitsev*

P.N. Lebedev Physical Institute
Russian Academy of Sciences,
119991 Moscow, Russia

Abstract Propagation of nonequilibrium acoustic phonons in ZnTe single crystals has been investigated both under optical generation of phonons and under phonon generation by a metal film heater. For [110] ZnTe orientation, the arrival of longitudinal and transverse acoustic phonons is found out; the phonon signals are well resolved especially in the case of phonon generation by a metal film heater. The „light-striking“ of the bolometer by emission of ZnTe is found with a time-constant ~ 90 ns that probably can be explained by the luminescence of oxygen complexes since the lifetimes of other complexes and bound excitons are much shorter.