

УДК 531:530.145+539.2

**ТЕРМАЛИЗАЦИЯ «ГОРЯЧИХ» НОСИТЕЛЕЙ
И ДИНАМИКА НАСЕЛЕННОСТИ УРОВНЯ
ЛОВУШЕК В КРИСТАЛЛЕ CdS
С ФЕМТОСЕКУНДНЫМ ВРЕМЕННЫМ
РАЗРЕШЕНИЕМ**

*A.B. Леонтьев, K.B. Иванин, B.C. Лобков,
B.B. Самарцев, Г.М. Сафиуллин*

Аннотация

Представлены результаты экспериментального исследования полупроводникового кристалла CdS методами фемтосекундной спектроскопии. Установлено, что заселение уровня ловушек производится через двухфотонное возбуждение в зону проводимости. Зарегистрирована динамика спада населенности уровня ловушек с характерным временем 550 пс. Определена длительность вынужденной излучательной рекомбинации, проведена оценка времени взаимодействия носитель-фонон в 20 фс.

Ключевые слова: фемтосекундная спектроскопия, сульфид кадмия, уровень ловушек, двухфотонное возбуждение, термализация.

Введение

Использование техники фемтосекундной нелинейной спектроскопии позволяет измерять параметры сверхбыстрой динамики внутри- и межзонной релаксации в полупроводниках, недоступной для исследования другими методами [1]. В работе [2], посвящённой оптическим свойствам нанокристаллов на основе CdS, исследован процесс возбуждения электрона с резонансным переходом из валентной зоны на уровень ловушек, лежащие внутри запрещённой зоны. Во множестве источников (см., например, [3, 4]) опубликованы спектральные характеристики излучения, соответствующего релаксации с таких уровней. Исследования же временной динамики требуют привлечения методов фемтосекундной спектроскопии с временным разрешением. В настоящей работе определяется время жизни уровней ловушек и обсуждается механизм их заселения в монокристалле CdS.

1. Время жизни уровня ловушек

Исследуемый образец CdS представлял собой кристалл толщиной 1 мм, оптическая ось которого направлена нормально к поверхности. Использованные в описанных ниже экспериментах лазерные импульсы имели следующие параметры: длительность $50 \div 60$ фс, спектр шириной 40 нм с максимумом на длине волны 790 нм. Время жизни уровня ловушек определялось в эксперименте по схеме «накачка – зондирование» с временным разрешением. Лазерные импульсы с энергией $1.3 \div 3.3$ мкДж (накачка) и 0.02 мкДж (зондирующий) сфокусированы линзой на поверхность образца в пятно диаметром ~ 50 мкм. Временной интервал между ними может быть установлен с использованием оптической линии задержек в интервале $0 \div 150$ пс. При прохождении мощного импульса накачки через образец

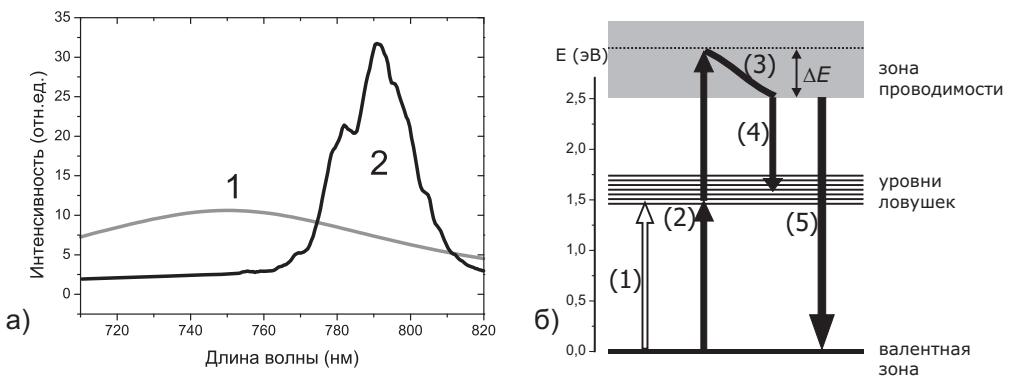


Рис. 1. а) 1 – полоса люминесценции с уровнями ловушек (взято из [4]); 2 – спектр лазерных импульсов; б) схема уровней и переходов

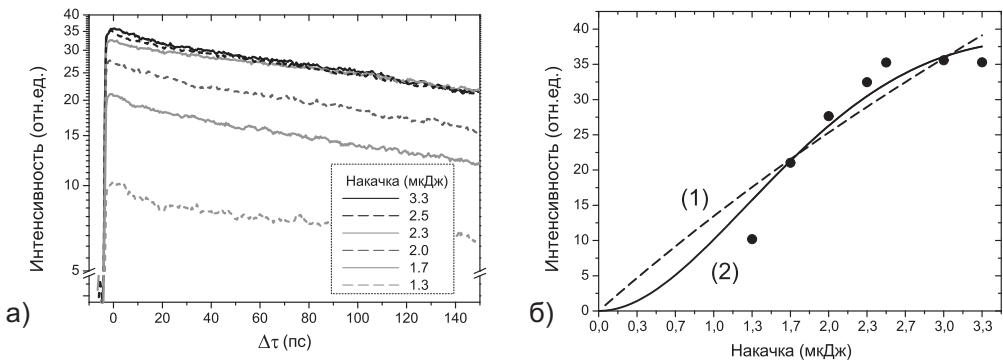


Рис. 2. а) Зависимость интенсивности зондирующего пучка от времени задержки Δt ; б) интенсивность зондирующего пучка при $\Delta t = 2$ пс в зависимости от энергии накачки: точки – экспериментальные данные, линия 1 – аппроксимация в модели насыщающегося перехода в двухуровневой схеме, линия 2 – в модели двухфотонного поглощения с последующей релаксацией на зондируемый уровень

уровень ловушек частично насыщается. Динамику опустошения уровня можно наблюдать, регистрируя интенсивность зондирующего пучка, задержанного на Δt относительно накачки. Измеренное характерное время разрушения населённости уровня составило 550 пс. Можно предположить две причины заполнения зондируемого уровня – прямое возбуждение из валентной зоны (рис. 1, б (1)) или релаксация из зоны проводимости, которая насыщается в процессе двухфотонного поглощения (рис. 1, б (2–3–4)). Характер зависимости населённости от интенсивности накачки (рис. 2, б) позволяет сделать выбор в пользу процесса с поглощением двух фотонов (2).

Об эффективном двухфотонном поглощении свидетельствует наблюдение излучения на частоте, соответствующей ширине запрещенной зоны 2.45 эВ (рис. 1, б (5)). Спектр излучения показан на рис. 4, а. Согласно оценке, сделанной в [5], исходя из динамики населенности дна зоны проводимости, длительность этого излучения не должна превышать 400 фс. Это длительность *вынужденной* излучательной рекомбинации, продолжающейся, пока населенность в зоне проводимости, созданная импульсом накачки, остается избыточной.

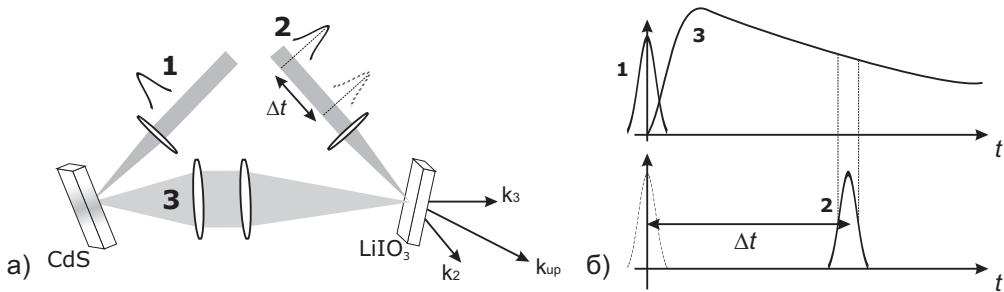


Рис. 3. Схема эксперимента по методике ап-конверсии: **1** – импульс накачки; **2** – опорный импульс; **3** – излучение, индуцированное импульсом накачки

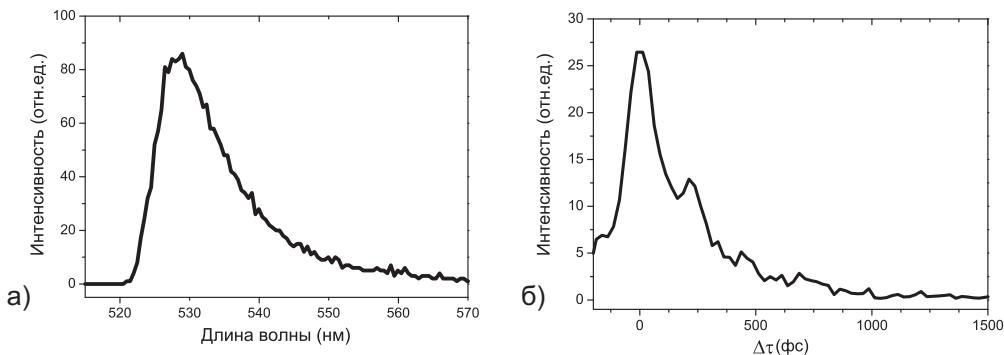


Рис. 4. Спектр (*a*) и временная форма (*б*) сигнала излучательной рекомбинации, полученная методом ап-конверсии

2. Длительность вынужденной излучательной рекомбинации

Прямое измерение длительности вынужденной эмиссии производилось методом ап-конверсии (рис. 3). Импульс накачки (1.3 мкДж) **1** используется для возбуждения образца. Исследуемое излучение затем собирается при помощи системы линз и фокусируется в кристалле LiIO_3 . Опорный импульс **2** задержанный на Δt , также фокусируется в той же области нелинейного кристалла. Регистрируемый сигнал на суммарной частоте в зависимости от времени задержки представляет собой свертку временной формы исследуемого сигнала и опорного импульса [6]. Зависимость сигнала ап-конверсии от задержки Δt показана на рис. 4, б. Это прямое измерение подтверждает оценку [5] – длительность излучения не превышает 400 фс. Поскольку избыточная населенность нижних уровней зоны проводимости, падающая при вынужденной эмиссии, восстанавливается в процессе «охлаждения» носителей (рис. 1, б (3)), обладающих после возбуждения импульсом накачки избыточной кинетической энергией $\Delta E = 0.66$ эВ, длительность вынужденной эмиссии определяется характерным временем термализации. Потеря кинетической энергии «горячих» носителей с переносом ее в кристаллическую решетку реализуется главным образом при полярном рассеянии на LO-фононах с энергией 37.8 мЭв [7, 8].

Временная форма сигнала зависит от множества связанных между собой процессов – термализации носителей, спонтанной и вынужденной рекомбинации, реабсорбции и вторичного разогрева носителей и т. д., так что учитывая все эти процессы теоретическая модель использовала бы заведомо чрезмерное количество неизвестных параметров. Тем не менее характерное время спада сигнала позволяет оценить среднее время взаимодействия носитель–фонон приблизительно в 20 фс.

Работа поддержана Программой Президиума РАН «Квантовые мезоскопические и неупорядоченные системы», Программой ОФН РАН «Фундаментальная оптическая спектроскопия и ее применения», Программой Президента РФ (проект НШ 5289.2010.2), Федеральной Программой «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2012 гг. (ГК № 02.740.11.0428) и РФФИ (проекты № 11-02-00040-а, 12-02-90000-Бел_а, 12-07-97017-Поволжье_а).

Summary

A.V. Leontiev, K.V. Ivanin, V.S. Lobkov, V.V. Samartsev, G.M. Safiullin. Hot-Carrier Thermalization and Trap Level Population Dynamics in a CdS Crystal on a Femtosecond Time Scale.

We present the results obtained in the experimental studies of a semiconductor CdS crystal using a femtosecond spectroscopy technique. The trap level was found to be populated via the two-photon interband excitation process, and its relaxation lifetime was about 550 ps. The duration of ultrashort stimulated recombination emission was directly measured and found to be less than 400 fs. The estimated carrier-phonon interaction time was of 20 fs order.

Keywords: femtosecond spectroscopy, cadmium sulfide, trap level, two-photon excitation, thermalization.

Литература

1. *Weiner A.M.* Ultrafast optics. – John Wiley and Sons, 2009. – 580 p.
2. *Chon J.W.M., Min Gu, Bullen C., Mulvaney P.* Three-photon excited band edge and trap emission of CdS semiconductor nanocrystals // Appl. Phys. Lett. – 2004. – V. 84, No 22. – P. 4472–4474.
3. *Artem'jeva O.O., Vakulenko O.V., Dacenko O.I.* Amphoteric center of luminescence in CdS // Semicond. Phys., Quantum Electron. and Optoelectron. – 2005. – V. 8, No 2. – P. 58–60.
4. *Seyhan A.* Photoluminescence spectroscopy of CdS and GaSe. – Middle East Technical Univ., 2003. – 88 p.
5. *Lami F., Gilliot P., Hirlimann C.* Two-photon excited room-temperature luminescence of CdS in the femtosecond regime // Phys. Rev. B. – 1999. – V. 60, No 7. – P. 4763–4770.
6. *Shah J.* Ultrafast luminescence spectroscopy using sum frequency generation // IEEE J. Quantum Electron. – 1988. – No 24. – P. 276–288.
7. *Днепровский В.С., Климов В.И., Ноевиков М.Г.* Перестройка спектров излучения электронно-дырочной плазмы CdSe при сильном замедлении внутризонной релаксации // Письма в ЖЭТФ. – 1990. – Т. 52, № 10. – С. 1130–1134.
8. *Lami F., Gilliot P., Hirlimann C.* Observation of interband two-photon absorption saturation in CdS // Phys. Rev. Lett. – 1996. – V. 77, No 8. – P. 1632–1635.

Поступила в редакцию
30.03.11

Леонтьев Андрей Владимирович – младший научный сотрудник, Казанский физико-технический институт КазНЦ РАН, г. Казань, Россия.

E-mail: andrey@inbox.ru

Иванин Константин Валерьевич – младший научный сотрудник, Казанский физико-технический институт КазНЦ РАН, г. Казань, Россия.

Лобков Владимир Сергеевич – кандидат физико-математических наук, заведующий лабораторией быстропротекающих молекулярных процессов, Казанский физико-технический институт КазНЦ РАН, г. Казань, Россия.

Самарцев Виталий Владимирович – доктор физико-математических наук, профессор, заведующий лабораторией нелинейной оптики, Казанский физико-технический институт КазНЦ РАН, г. Казань, Россия.

E-mail: *samartsev@kfti.knc.ru*

Сафиуллин Георгий Маратович – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, Казанский физико-технический институт КазНЦ РАН, г. Казань, Россия.