



Beynəlxalq Konfrans "Fizika-2005"
International Conference "Fizika-2005"
Международная Конференция "Fizika-2005"

7 - 9
 İyun
 June 2005
 Июнь

səhifə
 page 618-622
 стр.

Bakı, Azərbaycan

Baku, Azerbaijan

Баку, Азербайджан

НЕЛИНЕЙНОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ И ВОСПРИИМЧИВОСТЬ ТРЕТЬЕГО ПОРЯДКА В InAs В ИНФРАКРАСНОЙ ОБЛАСТИ

МУСАЕВ М.А.

*Азербайджанская Государственная Нефтяная Академия, пр. Азадлыг, 20,
 AZ1010, Баку, Азербайджан, E-mail: ihm@adna.baku.az*

Измерены нелинейные восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ и коэффициент нелинейного поглощения в InAs n – типа с разной степенью легирования. Полученные значения $\chi^{(3)} \cdot 10^{-7}$ СГСЭ существенно превышают значения, вычисленные на основе модели описывающей нелинейную восприимчивость электронов, находящихся в непараболической зоне проводимости. Показано, что наблюдаемое расхождение устраняется, если в расчете учесть диссипацию энергии электронов. Рост эффективности при четырехволновом взаимодействии в узкозонных полупроводниках ограничивается нелинейным поглощением взаимодействующих волн.

Одной из важнейших задач прикладной нелинейной оптики является поиск сред с возможно большими значениями нелинейных восприимчивостей. В этом отношении полупроводники, как показали эксперименты, являются одними из наиболее перспективных сред [1]. Большие нелинейности последних в принципе выводит из того факта что именно полупроводники с их сравнительно малой шириной запрещенной зоны E_g характеризуются достаточно низкими внутренними полями $E_0 = \frac{mE_g^3}{e^2 \hbar^2}$, определяющими силы связи, действующие на оптические электроны. Поэтому даже не слишком высокие лазерные поля уже должны обеспечить большой вклад в восприимчивость электронной нелинейной поляризации.

Изучение кубических восприимчивостей – центральный вопрос нелинейной спектроскопии. Эффекты, обусловленные кубической восприимчивостью, лежат в основе таких методов нелинейной спектроскопии как двухфотонная спектроскопия, спектроскопия насыщения, а также позволяют решить такую важную практическую задачу – как коррекция фазовых искажений методом четырехволнового взаимодействия [2].

Для получения высокой эффективности отражения излучения на длине волны CO₂-лазера при ЧВ значительный интерес представляют узкозонные полупроводники [2]. В данной работе исследовались образцы InAs с разной степенью легирования при комнатной и азотной температурах (см. таблицу 1).

Таблица 1

№ образца	Концентрация свободных электронов, $N_e \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$	Толщина образца $l, \text{ см}$	Подвижность свободных электронов μ , $10^4 \text{ см}^2 / \text{ В} \cdot \text{ с}$	Коэффициент поглощения $\alpha, \text{ см}^{-1}$		Константа нелинейного взаимодействия $M, \frac{\text{ см}}{\text{ МВт}}$	
				300 К	77 К	300 К	77 К
1	0,1	0,11	4,8	1	1	2,25	0,4
2	0,3	0,03	4	2,3	-	5,6	-
3	1,6	0,05	2,5	8,4	4	1,6	3,9
4	5,3	0,11	1,8	28	-	2,7	-

Для всех областей применения полупроводников важно знать предел их работоспособности по интенсивности лазерного излучения. Этот предел обычно накладывается порогом разрушения материала. Измерение порога пробоя на поверхности всех исследованных в нашей работе образцов показало, что эта величина лежит в диапазоне $3 \div 4 \cdot 10^7$ Вт/см². Как показывают измерения пропускания образцов InAs, в отличие от широкозонных полупроводников (например, Ge) еще при интенсивностях излучения ниже порога пробоя на поверхности в них наблюдается заметное уменьшение пропускания (рис.1).

Это уменьшение пропускания является обратимым, проявляется при интенсивности излучения $J \geq 10^6$ Вт/см², и обусловлено процессами нелинейного поглощения излучения в исследуемых полупроводниках. Сопоставленные величины кванта излучения CO₂-лазера ($\hbar\omega \approx 0,117$ эВ) с шириной запрещенной зоны InAs (0,35 эВ) позволяет предположить, что нелинейное поглощение в них обусловлено трехфотонным процессом.

Для определения из данных по пропусканию констант поглощения рассмотрим задачу о зависимости пропускания от интенсивности с учетом линейного и нелинейного поглощения. В стационарном случае изменение интенсивности при прохождении света в полупроводниках при наличии эффектов трехфотонного поглощения можно записать следующим образом

$$-dI = \alpha I(x)dx + \eta I^3(x)dx + \delta I^4(x)dx \quad (1)$$

Здесь α – коэффициент линейного поглощения, η – коэффициент трехфотонного поглощения, δ – коэффициент поглощения свободными дырками, возникающими в результате трехфотонного поглощения. δ связан с η следующим соотношением:

$$\frac{\delta}{\eta} = \frac{q\tau}{3\hbar\omega} \quad (2)$$

где q – сечение поглощения свободными дырками, τ – время жизни неравновесных носителей. В соединениях типа A^{III}B^V сечение поглощения свободными дырками оказывается настолько большим [3], что уже при умеренных интенсивностях лазерного излучения вторым членом в правой части (1) можно пренебречь. В этом случае выражение для пропускания образцов с учетом 3-фотонного поглощения в зависимости от интенсивности падающего излучения I_0 принимает вид

$$T^{(3)} = (1 - r) \sqrt[3]{\frac{\alpha e^{-3\alpha\ell}}{\alpha + \delta I_0^3 (1 - e^{-3\alpha\ell})}}, \quad (3)$$

где r – коэффициент Френелевского отражения от поверхности образца, ℓ – длина образца.

Сопоставление результатов экспериментальных исследований (рис.1) с данными расчета по формулам (3) позволяет непосредственно определить

величины δ . С учетом разброса экспериментальных данных для InAs получено

$$\delta = 0,14 \pm 0,07 \text{ см}^5 / \text{МВт}^3.$$

В традиционной схеме обращения волнового фронта при четырехволновом взаимодействии коэффициент отражения R волны E_3 в волну E_4 по интенсивности связан с $\chi^{(3)}$ соотношением [4]

$$R = |E_4 / E_3|^2 = |(4\pi\omega/cn)\chi^{(3)}E_1E_2\ell|^2 \quad (4)$$

где c – скорость света в вакууме, n – линейный показатель преломления, E_1, E_2 – среднеквадратичные напряженности полей опорных волн; ℓ – длина среды. В случае, когда среда обладает линейным (α – коэффициент линейного поглощения по интенсивности) и нелинейным ($\gamma_n J^{n-1}$ – коэффициент нелинейного поглощения по интенсивности) поглощением при условии $\gamma_n J^{n-1} \ll \alpha$ и в борновском приближении для R может быть получено выражение [5]

$$R = 4M^2 J_1^2 \ell^{-2\alpha_{\text{эфф}}} \left(\frac{1 - \ell^{-\alpha_{\text{эфф}}}}{\alpha_{\text{эфф}}} \right)^2 \quad (5)$$

где $\alpha_{\text{эфф}} = \alpha + \gamma_n J^{n-1}$.

Здесь γ_n – константа n -фотонного поглощения,

$M = \frac{\pi\omega\chi^{(3)}}{cn}$ – константа, характеризующая нелинейность среды. Из этого выражения следует, что при учете только линейного поглощения зависимость $R = f(J_1)$ должна оставаться квадратичной. Появление нелинейного поглощения приводит к ограничению роста R в зависимости от J_1 , а при больших J_1 должно приводить к его спаду.

Результаты измерения зависимости R от J_1 в образцах InAs приведены на рис 2. С ростом J_1 R в обоих образцах сначала растет квадратично, затем R достигает максимума и уменьшается.

Константа M , характеризующая нелинейную связь взаимодействующих волн, определялась по формуле (5) для каждого образца из данных по измерениям зависимости R от J_1 при малых J_1 , когда нелинейным поглощением можно пренебречь и наблюдается квадратичная зависимость R от J_1 ,

$$M = \frac{\alpha\sqrt{R}}{2J_1 e^{-\alpha\ell}(1 - e^{-\alpha\ell})}. \quad (6)$$

Известно, что ширина запрещенной зоны в большинстве полупроводников (к ним относятся InAs) с понижением температуры T растет [3]:

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{aT^2}{b+T} \quad (7)$$

Здесь $E_g(0)$ - ширина запрещенной зоны при $T = 0\text{K}$, а и b - константы. В InAs $E_g(0) = 0,426\text{эВ}$, соответствующая величина $E_g(300\text{K})$ составляет $0,35\text{эВ}$ ($\approx 3\hbar\omega_{\omega_2}$). Таким образом, при охлаждении InAs ($a \approx 3,16 \cdot 10^{-4} \frac{\text{эВ}}{\text{град}}$, $b \approx 93\text{K}$), например, до температуры жидкого азота, $E_g(T=77\text{K})$ по сравнению с $E_g(300\text{K})$ возрастает до $\sim 0,41\text{эВ}$, что заметно превышает $3\hbar\omega$, то есть нелинейное поглощение в InAs при понижении температуры должно заметно уменьшаться.

Функцией температуры является также и линейное поглощение в полупроводниках, однако связь α с T сильно зависит от механизма поглощения излучения. В том случае, если поглощение вызвано дефектами кристалла и посторонними примесями, α практически не зависит от T. Если поглощение обусловлено свободными носителями, то связь α и T определяется механизмом рассеяния свободных носителей [6] и практически для всех механизмов рассеяния α уменьшается с понижением температуры.

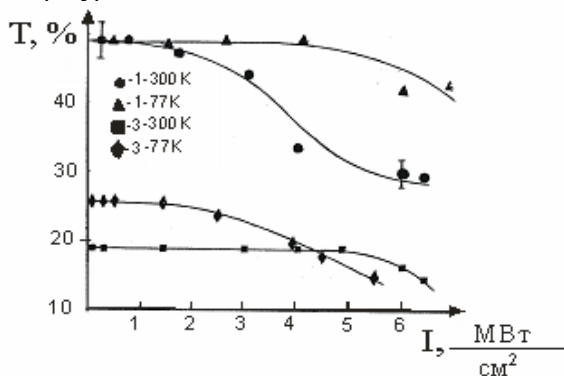


Рис.1 Зависимости пропускания T образцов InAs №1,3 (с разными N_c) от I при комнатной и азотной температурах.

Экспериментально влияние температуры на α и γ_n в InAs исследовалось в образцах №1,3. Результаты исследования образца InAs в №1 показывает, что линейное поглощение его с понижением температуры не изменилось ($\alpha \approx 1\text{см}^{-1}$). В то же время интенсивность падающего излучения, при которой начинает заметно проявляться нелинейное поглощение, выросла с $\sim 1\text{МВт/см}^2$ при $T=300\text{K}$ до $\sim 4 \div 5\text{МВт/см}^2$ при $T=77\text{K}$. Полученные результаты свидетельствуют, что линейное поглощение в этом образце обусловлено дефектами кристалла и посторонними примесями. Уменьшение же нелинейного поглощения связано в данном образце с увеличением ширины запрещенной зоны при понижении температуры и переходом в область E_g , где нелинейное поглощение

определяется процессами четырехфотонной генерации электрон-дырочных пар. В отличие от образца №1, в образце №3 обнаружено заметное уменьшение (примерно в 2 раза с $8,4$ до $\sim 4\text{см}^{-1}$) линейного поглощения. Интенсивность, при которой нелинейное поглощение заметно изменяет пропускание образца с понижением температуры, также заметно уменьшается. Наблюдаемое в образце 3 изменение α с температурой хорошо согласуется с теоретической зависимостью поглощения излучения свободными электронами от температуры в полупроводниках [6]. Неизменность константы нелинейного поглощения в образце InAs №3 оказалась неожиданной. Причина такого эффекта, видимо, связана с тем, что донорная примесь вблизи дна зоны проводимости при достаточно высокой концентрации образует примесную зону. Расстояние ее от валентной зоны $E_{\text{пр}} < 3\hbar\omega_{\text{CO}_2}$ и слабее зависит от температуры, чем E_g . Поэтому процесс генерации

неравновесных дырок в легированном InAs может оставаться трехфотонным за счет трехфотонного переброса электронов из валентной зоны в примесную, а нелинейное поглощение, обусловленное поглощением на неравновесных дырках, четырехфотонным. Из таблицы 1. следует, что значительное уменьшение R с понижением температуры в образце №1 связано с уменьшением константы M, характеризующей нелинейность среды, примерно в 5,5 раз. В образце №3 M наоборот выросло в 2,5 раза., что вместе с уменьшением в ~ 2 раза линейного поглощения привело к увеличению R в InAs 30 раз (см. рис. 2.). Полученные из экспериментальных данных значения $\chi^{(3)} = \frac{c\pi}{\pi\omega} M$ в

InAs существенно превышают значения $\chi^{(3)}$ в этих полупроводниках, обусловленные ангармонизмом движения связанных электронов (см. таблицу 2). С другой стороны, можно утверждать, что наблюдаемое отражение при ЧВ не связано с генерацией свободных носителей при трехфотонным в InAs поглощения. В противном случае, вместо наблюдаемой квадратичной зависимости R и J_1 , наблюдалось бы $R \sim J_1^6$ в InAs. Вклад теплового механизма нелинейности в R, как показали оценки, незначителен ($< 0,05\%$). Таким образом, можно предположить, что основным механизмом, ответственным за отражение при ЧВ в этих полупроводниках, является непараболичность зоны проводимости. Расчеты $\chi^{(3)}$, обусловленной непараболичностью зоны проводимости в полупроводниках, проводились в классической работе [7]. На рис. 3 точками представлены полученные экспериментальные данные $\chi^{(3)}$ для разных N_c и соответствующие $\chi_{\text{ЮБ}}^{(3)}$ в InAs, вычисленные по теории [7]. Как следует из рис. 3, экспериментальные значения $\chi^{(3)}$ сильно отличаются от $\chi_{\text{ЮБ}}^{(3)}$, и рост $\chi^{(3)}$ в зависимости от N_c не являются монотонным, как это должно следовать из теории. При низких

концентрациях носителей, ($N_e \leq 3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$) $\chi^{(3)} / \chi_{\text{ЮБ}}^{(3)}$ составляет $\sim 20 \div 30$, с увеличением N_e оно уменьшается и при $N_e \geq 1,6 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ это отношение составляет $4 \div 6$. Максимальное $\chi^{(3)} \approx 2,5 \cdot 10^{-7}$ СГСЕ в InAs наблюдалось в образце с $N_e \approx 3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Наблюдаемое отличие измеренных величин $\chi^{(3)}$ от $\chi_{\text{ЮБ}}^{(3)}$ может быть связано со следующим обстоятельством. Существующая в настоящее время схема вычисления нелинейных оптических восприимчивостей основана на разложении матрицы плотности системы, состоящей из вещества и электромагнитного поля, в ряд по теории возмущений. Для электронной поляризации параметром разложения в теории возмущений является $E/E_{\text{ат}}$.

При этом пренебрегается изменением функции распределения электронов в рассматриваемой системе.

Учет изменения функции распределения, для нелинейных оптических эффектов вырожденного типа в разложении поляризации по степеням поля приводит к появлению параметров отличных от $E/E_{\text{ат}}$ и даже существенно превышающих его. Именно с этими параметрами связано в теории возникновение больших и даже "гигантских" нелинейностей при взаимодействии излучения с веществом. Таким образом, наблюдающиеся большие нелинейности можно рассматривать как реакцию вещества на происходящие в нем под действием поля макроскопические изменения (генерация носителей тока в полупроводниках, насыщения поглощения, изменение системы энергетических уровней и др.) и сопутствующие им необратимые изменения в системе.

В частности, с учетом диссипации энергия свободных электронов за счет взаимодействия с кристаллической решеткой, ионами примеси и др. в работе [8] показано, что нелинейная восприимчивость, обусловленная непараболичностью зоны проводимости, при вырожденном ЧВ может существенно превышать $\chi_{\text{ЮБ}}^{(3)}$.

$$\chi^{(3)} = 2 \cdot \frac{\tau_E}{\tau_p} \cdot \chi_{\text{ЮБ}}^{(3)}$$

Здесь τ_p - время релаксации по импульсу, τ_E - время релаксации по энергии.

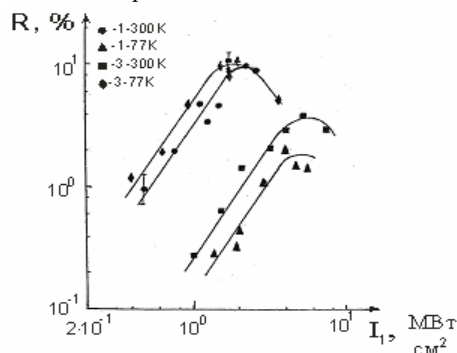


Рис.2 Зависимости R от I в образцах InAs № 1, 3 при комнатной и азотной температурах.

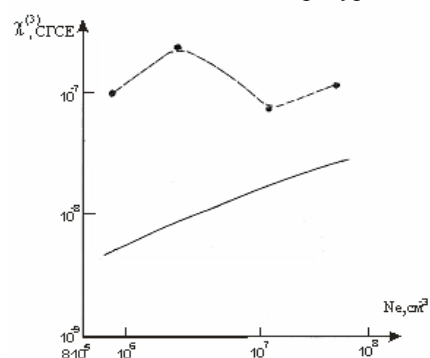


Рис. 3. Зависимости $\chi^{(3)}$ в InAs от концентрации свободных электронов N_e (сплошная кривая – расчет [6]).

В таблице 2 приведены экспериментально измеренные величины $\chi^{(3)}$ и $\chi_{\text{ЮБ}}^{(3)}$ для соответствующих N_e . Из отношения этих величин определены значения τ_E/τ_p . Представлены также рассчитанные из данных по подвижности μ

величины $\tau_p = \frac{m_e^* \mu}{e}$ и определенные из данных о τ_E/τ_p и τ_p значения τ_E .

Таблица 2

$N_e, \text{ см}^{-3}$	10^{16}	$3 \cdot 10^{16}$	$1,6 \cdot 10^{17}$	$5,3 \cdot 10^{17}$
$\chi^{(3)}, \text{ СГСЕ}$	$1,01 \cdot 10^{-7}$	$2,52 \cdot 10^{-7}$	$0,72 \cdot 10^{-7}$	$1,21 \cdot 10^{-7}$
$\chi_{\text{ВП}}^{(3)}, \text{ СГСЕ}$	$4,9 \cdot 10^{-9}$	$8 \cdot 10^{-9}$	$1,7 \cdot 10^{-8}$	$2,2 \cdot 10^{-8}$
τ_E/τ_p	10,3	15,8	2,1	2,7
$\tau_p, \text{ пс}$	0,8	0,65	0,4	0,2
$\tau_E, \text{ пс}$	8,2	10,3	0,8	0,54

Полученные данные τ_E/τ_p и τ_E в InAs по порядку величины совпадает с характерными значениями этих величин в полупроводниках [6]. На

времена релаксации τ_E и τ_p существенным образом влияет механизм рассеяния носителей (рассеяния на ионах примеси, на дислокациях, на оптических и

акустических колебаниях и др.).

Из таблицы видно, что с увеличением концентрации электронов (и соответственно концентрации ионов примеси) время релаксации по импульсу τ_p уменьшается. Такое поведение τ_p в зависимости от N_e указывает на то, что увеличение концентрации примесей усиливает эффект рассеяния. Наблюдаемая зависимость τ_E/τ_p от N_e , по-видимому, связана с тем, что τ_E уменьшается с ростом N_e быстрее, чем τ_p .

Известно, что зонная структура в InAs хорошо описывается моделью Кейна [6] и структуру зоны проводимости можно описать как,

$$E(k) \sim \frac{\hbar^2 k^2}{4m_e^*} - \frac{\hbar^2 k^4}{4(m_e^*)^2 E_g}, \quad (8)$$

где k – волновой вектор электрона. Согласно этому выражению основной вклад в нелинейную восприимчивость $\chi^{(3)}$, обусловленную непараболическостью зоны проводимости, дают электроны с большими k . С уменьшением температуры число таких электронов уменьшается, и электроны накапливаются на дне зоны проводимости вблизи минимума (при $k=0$), где второй член в выражении (8) незначителен. По-видимому, наблюдаемое

уменьшение $\chi^{(3)}$ в образце с $N_e \approx 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ при $T \approx 77 \text{ K}$ относительно $\chi^{(3)}$ при 300 K связано с этим обстоятельством постольку, поскольку при $T \approx 77 \text{ K}$ эффективная плотность состояний в зоне проводимости $N_{\text{эфф}} \sim 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ и накопление всех электронов вблизи минимума зоны проводимости принципом Паули все еще не запрещено. С ростом N_e накопление электронов в области k , где второй член незначителен, затрудняется в соответствии с принципом Паули. Поэтому можно ожидать, что при больших N_e уменьшение $\chi^{(3)}$ с температурой будет не таким сильным, как при $N_e \approx 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Действительно, как показали эксперименты, в образце с $N_e \approx 1,6 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ $\chi^{(3)}$ не только не уменьшилось, а даже выросло. Этот рост, по-видимому, связан с тем, что с уменьшением температуры кристалла уменьшается тепловая скорость носителей заряда. В случае, когда основным механизмом является рассеяние на ионах примесей, уменьшение тепловой скорости носителей приводит к усилению взаимодействия носителей заряда с ионизованными атомами примеси, так как увеличивается длительность взаимодействия и уменьшается τ_p .

-
- [1]. R.W.Boyd. Order –of –magnitude estimate of the nonlinear optical susceptibility. Journal of modern optics, 1999, vol.46, №3,367-378.
- [2]. 2.V.I.Kovalev. Dispersive characteristics of a nonlinear response used for wave conjugation. Bulletin of the ussian Academy of Sciences. Physics. 1996 ,vol. 60, № 6, pp.908-920.
- [3]. Маделунг О. Физика полупроводниковых соединений элементов III и V группы. Перевод с англ. под ред. Б.И.Болтакса. – М., Мир, 1967, с.3-478.
- [4]. Yariv A., Pepper D.M. Amplified reflection, phase conjugation, and oscillation in degenerate four-wave mixing. – Opt. Lett., 1977, vol. 1, №1, p.16-18.
- [5]. Н.Г Басов, В.И. Ковалев, М.А.Мусаев, Ф.С. Фейзуллоев. Обращения волнового фронта излучения импульса CO₂-лазера.-В кн: Обращение волнового фронта лазерного излучения (Труды ФИАН, т. 172). Москва, Наука, 1986.
- [6]. Оптические свойства полупроводников (полупроводниковые соединения типа A^{III}B^V). Под ред. Р.Уиллардсона и А.Вира. (Перевод с англ. М.П.Белле, Л.Б.Златкина, О.В.Константинова. Под ред. Е.Ф.Гросса). – М., Мир, 1970, с.3-488.
- [7]. Юха С., Бломберген Н. Нелинейные оптические восприимчивости соединений A^{III}B^V и элементарных полупроводников VI группы. – В кн.: Нелинейные свойства твердых тел: Сборник статей. Под ред. В.М.Файна. – М.: Мир, 1972, с.17-35.
- [8]. Yuen S.Y., Wolff P.A. Difference-frequency variation of the free-carrier-induced, third-order nonlinear susceptibility in n-InSb. – Appl. Phys. Lett., 1982, vol. 40, №6, p.457-459.