

CdS 晶体非线性吸收电场效应的 时间过程*

赵智虹 娄素云 熊光楠 徐叙容

(天津理工学院材料物理研究所, 天津, 300191)

李振钢

(天津师范大学物理系, 天津, 300071)

路明哲

(南开大学现代光学研究所, 天津, 300071)

李多禄

(中国科学院长春物理研究所, 吉林, 长春, 130021)

摘要: 建立了一套光泵浦探针法测量 CdS 晶体光学非线性快过程的实验, 同时测定外加电场对激子-电子相互作用时间的影响, 以揭示光学非线性的特性和起源. 通过计算机数值计算模拟得出: 在没有外加电场作用下, 激子-电子相互作用的衰减时间为 60ps. 由实验结果可以看出外加电场使衰减时间略有延长.

关键词: 光学非线性吸收, 激子, 激子-电子散射, 外电场增强效应.

引言

由于在光学计算机、光信息存储和有关方面的应用前景, 光学非线性及双稳态的研究引起了普遍的重视和关注. 光学双稳态及存储器件使用的材料中, 无机半导体占有重要的地位, 其中, 对 CdS 材料室温下的 ps 量级的光学非线性特性已有报道, 这种光学非线性具有电场增强效应的特性^[2], 引起了极大关注. 因而, 对这类材料的光学非线性及其电场效应机理的研究是十分必要的.

根据已报道过的关于 CdS 室温下的光学非线性实验结果可以认为, CdS 晶体在室温下的非线性光学吸收产生机理可粗略地分为快过程和慢过程两大类. 慢过程可归结为由于

本文 1991 年 10 月 18 日收到, 修改稿 1992 年 2 月 28 日收到.

*国家自然科学基金(重大项目)资助项目.

高激发强度的光场对 CdS 晶体进行加热, 使声子与激子的数量大大增加, 同时伴有半导体禁带宽度变窄, 从而导致光学非线性吸收. 快过程则是由于光激发产生的激子与半导体中的电子及声子的相互作用而造成的.

本文中我们采用 pump-probe 的测量方法, 对 CdS 晶体的非线性吸收快过程进行研究. 通过测量在不同的泵浦光脉冲与探测光脉冲的相对延时下, CdS 晶体对探测光脉冲的吸收衰减, 观察了 CdS 晶体的非线性光学吸收的快过程, 确定了 CdS 晶体中激子的寿命, 同时测定了外加电场对激子-电子相互作用时间的影响.

1 实验

实验装置如图 1 所示, 被测量的 CdS 单晶厚约 $200\mu\text{m}$, 晶轴平行于晶体表面, 晶体表面所镀的金属膜上有一狭缝, 激光通过狭缝射入晶体, 通过这两个相互独立的金属膜, 对 CdS 晶体施加直流电场. 实验中所用的激光为自锁模氩离子激光器的脉冲激光, 光的中心波长为 514.5nm , 脉宽为 200ps , 重复频率为 82MHz . 由图 1 可见: 由激光器输出的激光脉冲分成两束, 一束作为泵浦脉冲, 另一束作为探测脉冲, 两束光会聚到晶体上, 由光电倍增管对探测脉冲进行接收. 测量时, 由步进马达带动光延迟器, 改变探测脉冲与泵浦脉冲之间的延迟, 由 X-Y 记录仪给出晶体吸收强度的变化. 为了减少探测光对实验结果的影响, 实验中探测光强不超过线性范围光强.

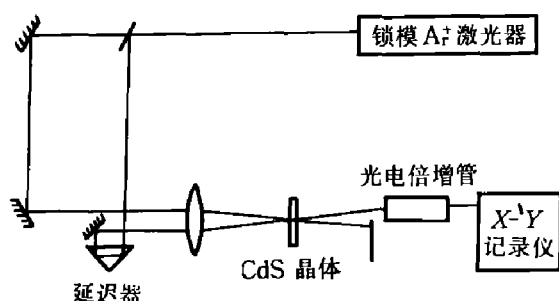


图 1 测量装置

Fig. 1 Experiment arrangement

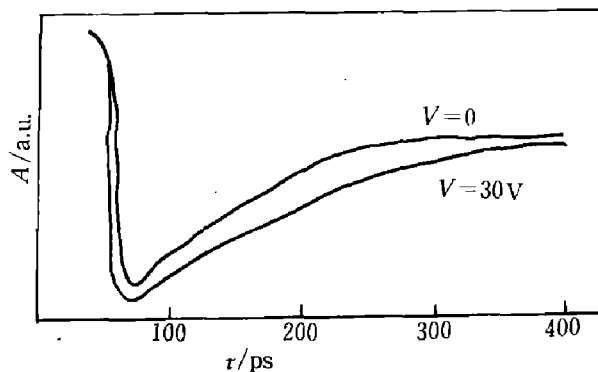


图 2 在施加外电场和外电场为零时晶体的非线性光谱吸收

Fig. 2 The nonlinear optical absorption of crystal at $V = 30\text{V}$ and $V = 0$

光学延迟器的延迟范围为 400ps , 探测脉冲经晶体后的透过率可以反映 CdS 晶体在强光脉冲 (泵浦光脉冲) 激发下的透过率的变化. 我们测量了室温下 CdS 晶体及其施加外直流电场下对强光的非线性吸收. 显然, 此时所测量的是光学非线性的快过程的结果. 图 2 给出了未施加外电场时 CdS 晶体对探测脉冲的吸收与延迟时间的关系曲线及施加外电场后吸收与延迟时间的关系曲线, 施加外电场 $V = 30\text{V}$ 后, CdS 晶体的非线性光学吸收效应有所增强, 且衰减时间增大.

2 非线性光学吸收效应机理讨论

CdS 晶体的非线性光学吸收的快过程是与强激发场造成 CdS 晶体中激子的产生有关. 在 CdS 这样的宽带隙半导体中, 束缚电子所受的库仑力能够受到自由电子的散射, 使激子的能级降低. 这样, 激子共振吸收的中心位置发生移动, 能够引起对外激发光的非线性吸收. 为了验证这样的观点, 我们进行过这样的实验^[2]. 通过不同光子能量的光对 CdS 晶体进行非线性光学吸收实验, 发现只有在靠近激子共振吸收带边的激发光才能出现非线性光学吸收, 而可以直接将电子激发到导带的激发光和远离带边的激发光均未表现出非线性光学吸收, 结果如图 3 所示. 这说明在强激发场作用下, 激子在晶体中强激发场的作用下使其带隙变小.

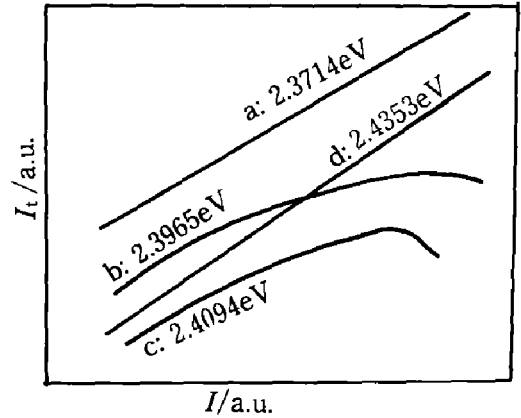


图 3 不同光子能量激发下的透射曲线
Fig. 3 Transmission as a function of incident intensity with different photon energies

图 2 所示的实验结果反映了晶体内激发态的衰减过程. 晶体中激发态的衰减可大致分为 3 种途径. 第 1 种是激发态之间的相互作用, 其结果是形成一个双激子或一个激发态复合而另一个激子的能量有所变化. 这一过程可表示为

$$\frac{dn_{ex}}{dt} = -Bn_{ex}^2, \quad (1)$$

式 (1) 中 n_{ex} 为激子浓度, B 为激子-激子作用截面. 激子浓度随时间的变化关系为

$$n_{ex} = \frac{n_{0ex}}{(1 + Bt)}. \quad (2)$$

第 2 种是激子对晶体中自由载流子的散射过程. 由于晶体中自由电子的运动速度远大于空穴的运动速度, 上述的散射过程主要是激子对电子的散射. 相应的速率方程可表示为

$$\frac{dn_{ex}}{dt} = \frac{-n_{ex}n_{el}}{T}. \quad (3)$$

式 (3) 中 T 为由电子-激子散射导致的激子寿命. 由于激子的寿命远小于自由电子的寿命, 在散射过程中可以认为电子的浓度不发生变化, 这样, 散射之后的电子处于更高的能量状态, 而激子则发生复合. 这一过程可以表示为

$$n_{ex} = n_{0ex} \exp\left(-\frac{t}{T}\right). \quad (4)$$

第 3 种为激子与晶体内声子的耦合作用. 晶体内声子与激子的相互作用能够引起激子的衰变, 相对来说这是慢过程. 我们可以把它和激子的自然衰变合并考虑, 并简单地用指数形式加以表示, 即

$$n_{ex} = n_{0ex} \exp\left(-\frac{t}{T_0}\right). \quad (5)$$

这里 T_0 表示声子与激子的作用而导致的激子寿命. 考虑到以上 3 种衰变的途径, 晶体内激子的浓度随时间的变化可以表示为

$$n_{ex} = n_{0ex} \left[\frac{L}{(1 + Bt)} + M \exp\left(-\frac{t}{T}\right) + N \exp\left(-\frac{t}{T_0}\right) \right]. \quad (6)$$

其中, L 、 M 和 N 为 3 种过程所占的权重, B 、 T 和 T_0 为 3 种过程的衰减时间.

3 曲线拟合

实验中所用的激光脉冲包络可认为是高斯形的, 即

$$I = g_0 \exp\left[-\left(\frac{t}{a}\right)^2\right]. \quad (7)$$

式 (7) 中 g_0 为脉冲的峰值功率, a 为脉冲的半宽.

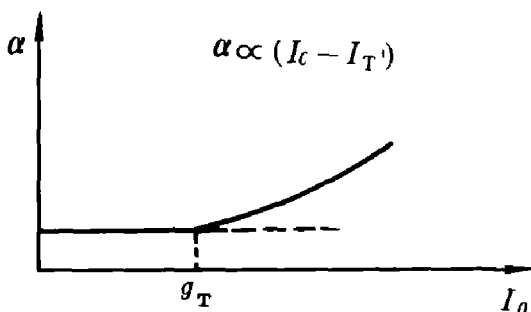


图 4 晶体吸收系数与入射强度的关系
Fig. 4 The absorption rate as a function of incident light intensity

Klingshirn^[3]曾报道了 CdS 晶体非线性过程的阈值. 在同样实验条件下, CdS 晶体的吸收系数与入射光强的关系如图 4 所示. 由此我们可以确定出产生非线性吸收的入射光强阈值为 $15.2\text{kW}/\text{cm}^2$. 在进行曲线拟合时, 我们仅考虑超过非线性阈值的部分, 此时光脉冲可写成

$$I = g_0 \left\{ \exp\left[-\left(\frac{t}{a}\right)^2\right] - \frac{g_T}{g_0} \right\}. \quad (8)$$

式 (8) 中 g_T 为非线性阈值. 光强与吸收系数的关系为

$$\alpha_c \propto (I - I_T)^2. \quad (9)$$

由于探测光脉冲很弱, 我们可以忽略探测脉冲对最后结果的影响, 则实验中所吸收的光强可表示为

$$I = I_0 \int_{-\tau a}^{+\tau a} \left(e^{-(t/a)^2} - \frac{g_T}{g_0} \right)^2 \left\{ \frac{L}{1 + B(\tau - t)} + M e^{-(\tau - t)/T} + N e^{-(\tau - t)/T_0} \right\} e^{-(\tau - t)^2/a^2} \cdot dt. \quad (10)$$

按照式 (10) 进行数值计算, 以最小二乘法为判据, 对实验曲线进行拟合, 得到 3 个过程的衰变时间以及各类过程所占的权重. 对施加外电场以后的实验曲线, 也可以进行同样的拟合. 表 1 给出了以上两种情况由拟合所得的各个参数以及拟合曲线与实验曲线之间的误差, 由结果可以看出, 理论曲线与实验曲线符合得相当好.

在施加外电场后, CdS 晶体的非线性光学吸收增强, 且吸收强度随延迟时间的变化变缓. 对此现象我们可以作如下定性解释: 在高密度激发下, 室温的 CdS 主要是激子-电

表 1 曲线拟合所确定的参数及拟合误差
 Table 1 The curve-fitted parameters and the fitting errors

	权 重			时间常数			平均绝对误差	平均相对误差
	<i>L</i>	<i>M</i>	<i>N</i>	<i>B</i>	<i>T</i>	<i>T₀</i>		
无外电场	0.6	1.2	1.8	0.015	60	700	0.03	0.019
有外电场	0.7	1.2	1.7	0.01	100	800	0.042	0.028

子散射和激子-多声子散射. 在 CdS 晶体上施加了外电场以后, 自由电子大量注入, 使半导体导带中的自由电子浓度增大, 这时, 电子-激子散射对 CdS 晶体的吸收有了显著的效果. 在电子-激子散射过程中, 电子通过散射增加了能量, 进入了更高的能态, 而激子将处于较低的能态, 乃至重新回落到禁带, 而散射后的电子仍保持有大的动量, 可以再次进行碰撞, 大大增加了电子-激子散射几率, 增加了 CdS 晶体的非线性光学吸收.

致谢: 论文的实验工作在长春物理所国家开放实验室完成. 作者感谢 Klingshirn 教授提供的 CdS 晶体.

参 考 文 献

- 1 熊光楠等. 半导体学报, 1991, 12: 172
- 2 Yang F, Xiong G, Xu X. *Phys. Stat. Sol. (b)*, 1988: 765
- 3 Klingshirn C, Hang H. *Physics Rep.*, 1981, 70: 315

THE TIME PROCESS OF THE ELECTRIC FIELD EFFECT ON NONLINEAR ABSORPTION OF CdS*

Zhao Zhihong, Lou Suyun, Xiong Guangnan, Xu Xurong

(Institute of Material Physics, Tianjin Institute of Technology, Tianjin 300191, China)

Li Zhengang

(Department of Physics, Tianjin Normal University, Tianjin 300071, China)

Lu Mingzhe

(Institute of Modern Optics, Nankai University, Tianjin 300071, China)

Li Duolu

(Changchun Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun, Jiling 130021, China)

Abstract: The pump-probe method is employed to measure the temporal process of the optical nonlinear absorption of CdS crystals and the effect of external electric field on the electron-exciton interaction in CdS crystal, to reveal the origin and characteristic of that optical nonlinearity. By simulation numerically, the decay time of electron-exciton interaction is about 60 ps while the external electric field is not applied to CdS crystal. And the experimental result shows that the decay time can be extended by external electric field.

Key words: optical nonlinear absorption, exciton, exciton-electron scattering, electric field enhancement effect.

* The project supported by the National Natural Science Foundation of China.