

CdS 半导体非线性吸收中的电场作用*

熊光楠 徐叙溶

(天津理工学院材料物理所, 天津, 300191)

申猛燕 李多禄 戚继发

(中国科学院长春物理所, 长春, 130021)

1990年7月3日收到

在 CdS 的室温光学非线性吸收过程中, 再外加直流电场, 观察到光学非线性吸收随外场增大而增大, 非线性出现的光强阈值随外场增大而减小。通过实验判断这一现象来源于电子-激子散射。

主题词 CdS, 光学非线性, 电子-激子散射, 发光光谱, 电场效应

由于光学计算机、光信息存储和有关应用的诱人前景, 光学非线性及双稳态的研究引起普遍关注。光学非线性及光学双稳态器件所选用的材料中, 无机半导体占有显著地位。CdS 材料室温下皮秒量级的光学非线性的报道^[1], 引起更多的关注。

CdS 光学非线性的产生机理, 粗略可分为热效应和激子的参与两大类。上述非线性吸收快过程可以归之于激子的参与。我们也观察到热效应产生的双稳态^[2]。

本文我们报道了当 CdS 在光学非线性吸收的条件下, 在晶体上再加上外电场, 观察到光学非线性的明显增强, 结合吸收谱和发光谱的实验, 确认我们所观察到的 CdS 中吸收增强型光学非线性来源于电子-激子散射。

一、 实验

CdS 单晶厚约 $200\mu\text{m}$ 。晶轴平行于晶体平面。用一对环形电极夹在晶体两面, 激光可以通过环孔。激光来自锁模氩离子激光器, 波长 5145\AA , 脉宽 200ps , 重复频率 82MHz 。室温下, 无外电场时, 透射光随入射光增加初期呈线性; 当入射激光光强增加到 15kW/cm^2 后, 透射光强呈饱和状态; 入射光强进一步增加, 透射光反而减弱, 呈现强烈的非线性吸收。在整个过程中, 反射光强与入射光强始终呈线性。

在上述实验中, 在晶体上再外加一直流电场, 由图 1 可见, 随外电场强增加, 透过光强减小, 出现饱和状态所需入射光强也减小。图 2 显示了在不同的固定的人射光强下, 透过光强与外加电压的关系。总之, 由于外场的作用, CdS 晶体的非线性光学吸收明显增强。

* 国家自然科学基金资助课题。

为了研究这种非线性增强型吸收的来源, 研究了非线性吸收与入射光波长的关系。氩离子激光器输出的 5145 \AA 光子能量与 CdS 的带隙能量差相近, 我们用氮分子激光器泵浦可调谐染料激光, 输出 490 到 560 nm 的可调谐激光。测量入射光强 I_i 和透射光强 I_t 的关系。从图 3 可见, I_t-I_i 的线性范围出现在入射光子能量小于 2.3714 eV 和大于 2.4353 eV 。当入射光子能量在 2.3965 eV 到 2.4094 eV , I_t-I_i 呈现明显的非线性。以上实验过程中, 我们特别注意减小入射光对晶体的加热效应, 因而避免了热效应引起的禁带变窄(CdS 带隙宽度随温度变化率为 $-5.2 \times 10^{-4}\text{ eV/k}$ [3])导致的光学非线性的干扰。热效应导致的光学非线性相对来说属于慢过程现象。

从上述实验已经看出快过程的非线性吸收是与激子有关的。因而又观察了 CdS 发光光谱。测量了不同激光光强下的发光光谱和不同温度下的发光光谱。激发光源是锁模 YAG:Nd 激光器的三次倍频光, 脉宽为 100 ps 。样品置于可变温低温杜瓦瓶中, 光谱仪是 Spex 1269 单色仪。在 $1\text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 激发强度下, 观测了 70 K 到 300 K 范围内 CdS

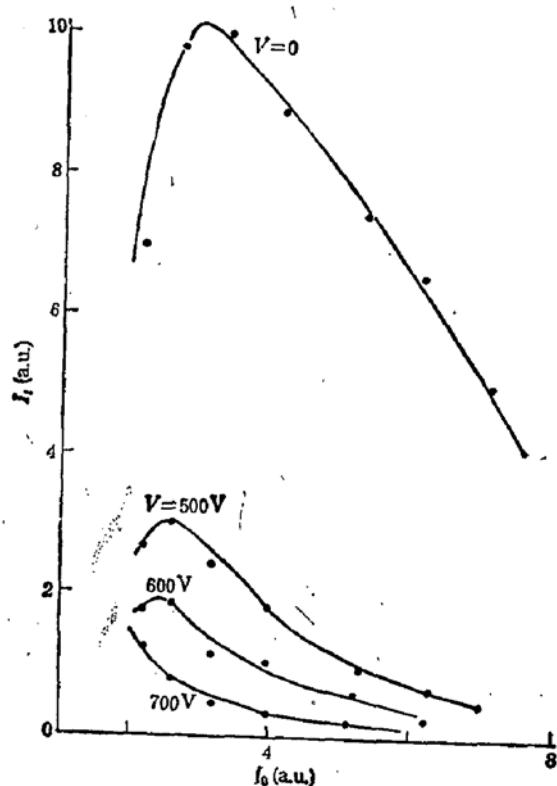


图 1 不同外电场下, 透过光强与入射光强的关系

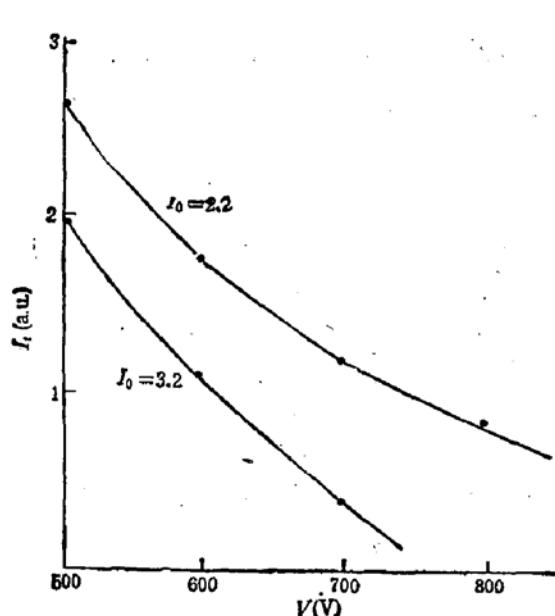


图 2 透过光强与外加电压的关系

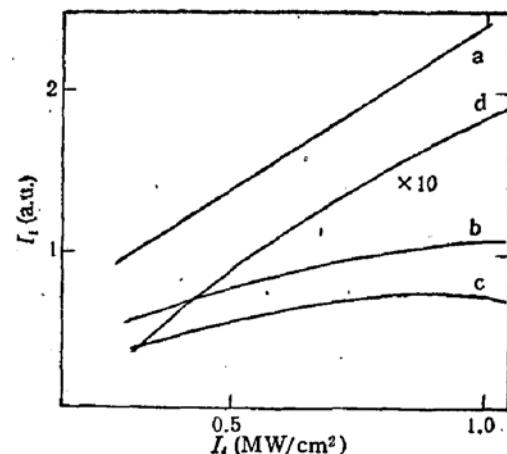


图 3 不同光子能量的入射光强与透射光强的关系。入射光子能量 (a) 2.3714 eV (b) 2.3965 eV (c) 2.4094 eV (d) 2.4353 eV 。激子跃迁能量 2.4219 eV 。

发光光谱与温度的关系。当温度增加时, $Ex-LO$ 带和 I 带从 70 K 开始展宽(图 4)。 $Ex-LO$ 是自由激子与 LO 声子的耦合。 I 带来自束缚于中性施主的激子的复合发光。 E 带是电子-激子散射的发射峰。当温度增加时, E 和 $Ex-2LO$ 的峰值位置移向低能。 E 带峰值位置随温度的变化率为 $d\hbar\omega_e/dT \sim -6.5 \times 10^{-4} \text{ eV/K}$, 比 CdS 带隙变化更大。

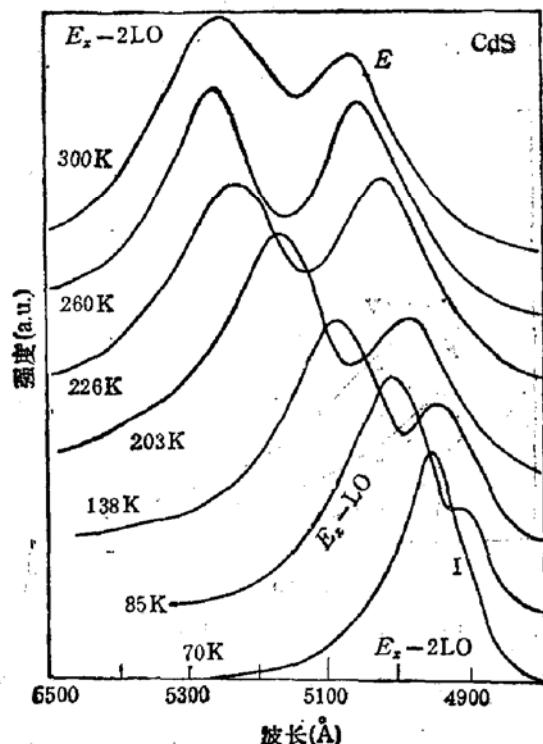


图 4 不同温度下 CdS 发光光谱激发强度为 $1 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$

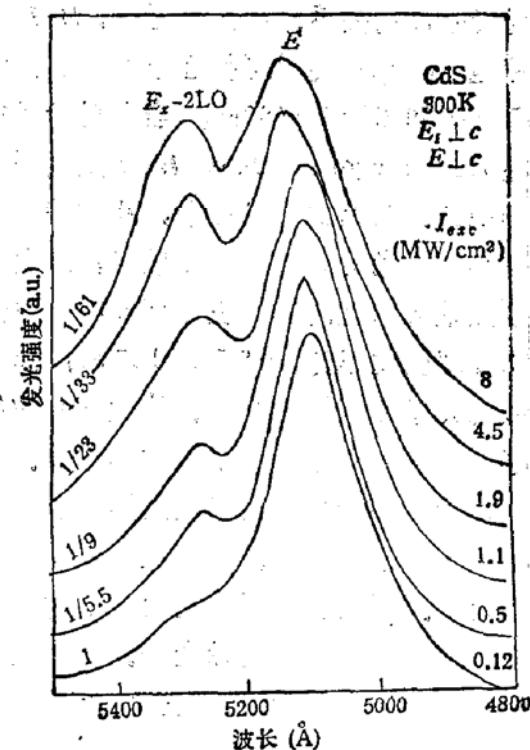


图 5 室温下不同激发密度下 CdS 的发光光谱

图 5 表明当激发强度 I_{exc} 变化时, E 带和 $Ex-2LO$ 带的变化情况: 随 I_{exc} 的增加, 两个带的发光强度也增加, 但是 $Ex-2LO$ 带增长更快。观测到随 I_{exc} 的增加, E 带峰值位置的红移。

二、讨 论

高密度激发下, 室温 CdS 中主要的元激发态相互作用是激子-电子散射 (ex-e1) 和激子-多声子散射 (ex-nLO)^[4]。我们的高密度激发下的实验也证实了这一点, 在图 4, 图 5 中主要的发光带来自 ex-e1 散射和 Ex-2LO 散射。在图 3 中, 可以看出, 非线性光学吸收出现的波长范围与图 4, 5 中的 ex-e1 散射带相一致。这一波长范围, 其光子能量从略小于激子能量到激子能量附近。也就是说, 存在某些状态, 它们的能量状态略小于激子; 当这种状态数足够大时, 引起强烈的非线性吸收; 也可观测到它们的辐射。我们下面证明, 这种状态就是激子-电子散射。

1969 年首次在 CdS 中引入激子-电子散射的概念^[5]。在激子-电子散射过程中, 电子通过散射增加了能量进入更高能态, 而激子发射一个比未经碰撞的激子更小能量的光

子。

激子-电子散射过程中,系统遵守能量守恒和动量守恒。

$$K + k_i = k_f, \quad (1)$$

$$E_0 + \hbar^2 k^2 / 2M + Eg + \hbar^2 k_i^2 / 2m_e = \hbar\omega + Eg + \hbar^2 k_f^2 / 2m_e \quad (2)$$

式中 K 是激子动量, k_i, k_f 分别为散射前后的电子动量; E_0 是激子基态能量, 这时 $K = 0$; Eg 是禁带能隙; $\hbar\omega$ 是发射光子的能量。

可以导出

$$\hbar\omega = E_0 - E_K(M/m_e - 1) - 2\delta\sqrt{E_K E_{k_i} M/m_e} \quad (3)$$

其中 $0 < \delta < 1$, $E_K = \hbar^2 K^2 / 2M$, $E_{k_i} = \hbar^2 k_i^2 / 2m_e$. 在(3)式中, E_K 是描述激子温度的参量, 由于激子是波色子, E_K 与激发强度无关; 而 E_{k_i} 是描述电子温度的参量, 电子是费米子, 当激发强度增大时, E_{k_i} 将增大。从(3)式看出, 由于激发强度的增加, E_{k_i} 变大, 因而 $\hbar\omega$ 将减小。也就是说, 当激发强度增加时, 激子-电子散射系统发射的光子能量将红移。这与实验结果一致。

考虑光吸收的情形, 因为在荧光和吸收过程中, 能量守恒和动量守恒是相同的, 也可导出相同的公式, 只是 δ 值有所区别, 但也在 $0 < \delta < 1$ 区间。可见, 激子-电子散射的吸收峰也会随激发强度增加而红移。这与实验现象也一致。

再研究随着温度变化, 发射光谱峰值的变化规律。由于激子和电子的动能都遵从玻尔兹曼分布: $E \sim 3k_B T / 2$, 由(3)式可得发射光子能量为:

$$\hbar\omega = E_0 - 3k_B T / 2(M/m_e - 1 + 2\delta M/m_e) \quad (4)$$

可见, 当温度增加时, 峰值位置红移。这也与实验现象相一致。

当加上外电场后, 所加的最大外电场相当于 4×10^4 伏/厘米, 远低于激子电离所需的 14×10^4 伏/厘米的电场强度^[6]。因而不是离化激子。考虑到激子-电子散射过程的几率是与激子密度与电子密度乘积成正比的, 激子密度与导带电子和价带空穴密度成正比。因此, 激子-电子散射几率与导带电子密度的二次方成正比。加外电场后, 导带电子密度增加, 激子-电子散射几率也显著增加, 因而出现由激子-电子散射引起的非线性吸收的增加, 并使非线性吸收产生所必需的光激发功率降低。

三、结 论

通过讨论, 可以明显地看到, 非线性吸收所需入射光子能量略低于激子发射光子能量, 这是由于激子-电子散射过程导致电子能量增加而激子能量减小。通过激子-电子散射过程的动量守恒和能量守恒条件的分析, 导出激子-电子散射过程的复合发光光谱峰值将随激发密度的增加而红移, 也随温度的增加而红移, 红移的速度大于禁带宽度随温度变化导致的红移速度。也分析了吸收过程和发光过程的异同。这样就证明了我们在 Cds 上观察到的光学非线性吸收是由于激子-电子散射过程产生的。外加电场后, 由于电子密度的增加, 加大了激子-电子散射几率, 增加了非线性光学吸收, 降低了产生非线性光学吸收的阈值。

实验样品是由西德 Kaiserslautern 大学的 C. Klingshirn 教授提供的，实验工作是在中国科学院长春物理所激发态物理开放实验室内完成的。对此表示感谢。

参 考 文 献

- [1] H. Jingyu, D. Rensong and X. Xurong, *Journal De Physique*, 46, C7-185 (1985).
- [2] F. Yang, G. Xiong and X. Xu, *Phys. Stat. Sol.* (6) 150, 765 (1988).
- [3] R. Bube, *Phys. Rev.*, 98, 431 (1955).
- [4] C. Klingshirn and H. Haug, *Physics Rep.*, 70, 315 (1981).
- [5] C. Benoit a la Guillaume, *Phys. Rev.*, 177, 567 (1969).
- [6] D. F. Blossey, *Phys. Rev.*, B2, 3976 (1970).

Electric Field Effect on Optical Non Linear Absorption in Semiconductor

Xiong Guangnan, Xu Xurong
(Tianjin Institute of Technology)

Shen Mengyin, Lee Duolu and Qi Jifa
(Changchun Institute of Physics, Academia Sinica)

Abstract

An optical nonlinear absorption has been observed in CdS under an external DC electric field at Room temperature. Nonlinear absorption increases with the increase of the applied voltage. The incident light intensity needed for the appearance of nonlinear absorption decreases when the applied voltage increases. Theoretical estimation from the view point of exciton-electron scattering is in agreement with the experimental results qualitatively.

Key words CdS, Optical nonlinearity, Electron-exciton scattering, Fluorescence spectra, Electric field effect