УЧЕНЫЕ ЗАПИСКИ КАЗАНСКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО УНИВЕРСИТЕТА
Том 151, кн. 1 Физико-математические науки *2009*

УДК 531:530.145+539.2

ФЕМТОСЕКУНДНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ЧЕТЫРЕХВОЛНОВОГО СМЕШЕНИЯ В КРИСТАЛЛЕ CdS

К.В. Иванин, А.В. Леонтьев, В.С. Лобков, В.Г. Никифоров, Г.М. Сафиуллин, В.В. Самарцев

Аннотация

Проведено исследование кристалла CdS методами фемтосекундной спектроскопии четырехволнового смешения. Определено время фазовой релаксации, равное 180 фс. Особенности кривых спада когерентного отклика позволяют предположить, что причиной дефазировки является экситон-экситонное взаимодействие. Для кривых спада сигнала стимулированного эха характерно наличие дополнительной быстроспадающей компоненты с временем спада 4 пс при энергии возбуждающих импульсов, превышающей пороговое значение в 0.4 мкДж.

Ключевые слова: фемтосекундная спектроскопия, четырехволновое смешение, полупроводник, время дефазировки, комнатная температура.

Введение

В последнее время различные методы фемтосекундной лазерной спектроскопии получили широкое распространение при исследованиях быстропротекающих процессов в различных средах [1]. Использование техники нелинейной спектроскопии дает возможность получить информацию о динамике фазовой релаксации и населенностей возбужденных состояний в полупроводниках, которую зачастую невозможно исследовать другими методами спектроскопии. Эта динамика обязана как взаимодействию с электронами и дырками, так и взаимодействию с экситонами и фононами. Время дефазировки является важным параметром, так как оно характеризует внутренние и внешние процессы рассеяния на электронных носителях, примесях и фононах. Возбуждение ультракороткими оптическими импульсами выражается в рождении когерентных суперпозиций и когерентных многочастичных состояний. Данная работа посвящена исследованию полупроводникового кристалла CdS, находящегося при комнатной температуре, методами когерентной спектроскопии четырехволнового смешения. Недавно были предприняты попытки создания высокотемпературного эхо-процессора, основанного на методах фемтосекундного фотонного эха (ФФЭ) [1]. Существенным моментом этих исследований является то, что образец находится при комнатной температуре и нет необходимости в охлаждении среды. С позиций создания фемтосекундного эхо-процессора это означает существенное уменьшение размеров устройства. Один из первых экспериментов по ФФЭ в полупровроднике (GaAs) при комнатной температуре был выполнен П.Беккером с коллегами [2]. Были исследованы кривые спада сигналов ФФЭ для различных плотностей возбужденных электронов. Плотность носителей контролировалась путем изменения интенсивностей возбуждающих импульсов. В работе [3] было показано, что энергия первичного ФФЭ пропорциональна следующему экспоненциальному множителю

$$E_e \propto \exp(-\tau_{12}/T_e), \tag{1}$$

где $T_e = T_d/4$, T_d – время оптической дефазировки, τ_{12} – интервал времени между возбуждающими импульсами. В работе [2] по спаду интенсивностей сигналов для различных плотностей электронных носителей n от $2 \cdot 10^{17}$ до $7 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$ были определены значения T_e и было установлено, что

$$T_e = 6.8 \cdot N^{-0.3}, \tag{2}$$

а время оптической дефазировки падало с ростом N от 44 до 14 фс. Анализ показал, что оптическая дефазировка обязана электрон-электронному взаимодействию носителей.

С тематикой данной работы тесно связаны фемтосекундные эксперименты на кристалле CdS, выполненные в работах [4, 5]. В работе [4] исследовано межзонное поглощение (ширина запрещенной зоны равна 2.48 эВ) и было показано, что время электрон-дырочной рекомбинации не превышает 200 фс. Наиболее близкий фемтосекундный эксперимент по наблюдению первичного ФФЭ в кристалле CdS поставлен в работе [5]. Исследования проведены на длинах волн 600–710 нм с импульсами длительностью 180–260 фс. Показано, что осуществляется переход электронов в зону проводимости CdS вследствие двухфотонного поглощения. Кроме того, авторы обращают внимание на то, что в образце возбуждаются экситоны и экситонные молекулы [6], которые взаимодействуют с электронами, находящимися в зоне проводимости. Таким образом, можно ожидать, что причиной дефазировки является экситон-экситонное взаимодействие [5].

1. Эксперимент и обсуждение его результатов

Данный эксперимент проводился на фемтосекундной установке, подробно описанной в работах [7–11]. Возбуждающие импульсы имели следующие параметры: длительность 50–60 фс, спектр шириной 40 нм с максимумом на длине волны 790 нм, энергия импульса варьировалась в пределах $0.4 \div 0.7$ мкДж. Пучки фокусировались линзой с фокусным расстоянием 110 мм на кристалл CdS толщиной 1 мм, ось c которого перпендикулярна плоскости образца и, следовательно, векторам поляризации импульсов.

Методика анализа спада сигнала ФФЭ детально изложена в книге [1]. Суть методики заключается в одновременной регистрации когерентных откликов в направлениях волновых векторов $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ и $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ (где $\mathbf{k}_1$ и $\mathbf{k}_2$ – волновые векторы возбуждающих импульсов) как функции времени задержки между импульсами τ_{12} [12]. Зависимость интенсивностей когерентных откликов от τ_{12} в кристалле CdS, полученная нами, приведена на рис. 1.

В предположении о том, что выражение (1) применимо к описанию спада ФФЭ в результате потери когерентности экситонами [5], наблюдаемый спад с характерным временем 44 фс соответствует времени дефазировки $T_d = 176$ фс. В ситуации, когда длительность импульсов сравнима или превышает T_d, время дефазировки может быть получено из анализа временного сдвига $T_{\max}$ между максимумами сигналов в направлениях $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ и $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$. В нашем случае это значение составило 100 фс; из [12] следует, что для нашего значения раздвижки между максимумами сигналов время дефазировки составляет 180 фс, а однородная ширина Γ_{hom} может быть оценена по формуле $\Gamma_{\text{hom}} = 1/(\pi T_d) = 1.8 \cdot 10^{12}$ с$^{-1}$.

На рис. 2 приведены кривые спада сигнала стимулированного ФФЭ, для которых при энергии возбуждающих импульсов, превышающей пороговое значение 0.4 мкДж, характерно наличие дополнительной быстроспадающей компоненты (время спада 4.5 пс). Время спада стимулированного ФФЭ превышает время термализации (350 фс) и рекомбинации (200 фс) электронов [4, 5], что свидетельствует

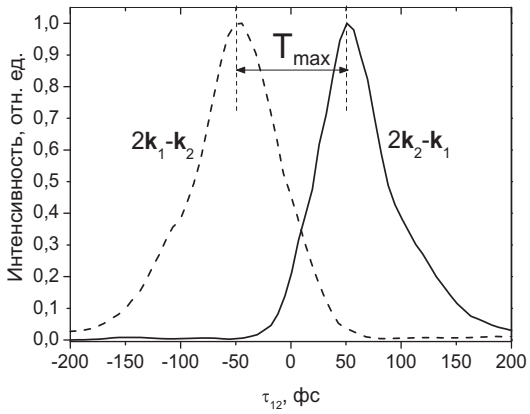

Рис. 1. Зависимость интенсивностей когерентных откликов в направлениях $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ и $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ от времени задержки τ_{12}

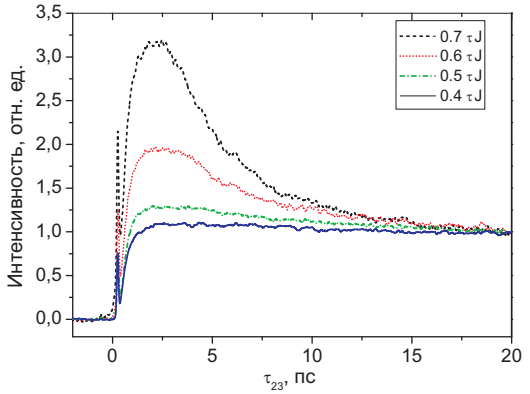

Рис. 2. Кривые спада стимулированного ФФЭ при различных значениях энергии импульсов. Значение временного интервала τ_{12} составляло 120 фс

в пользу экситонной природы возбуждения. Тем не менее другие интерпретации природы полученных сигналов не исключаются.

Работа выполнена в рамках программ Президиума РАН «Квантовая физика конденсированных сред» и ОФН РАН «Фундаментальная спектроскопия и ее применения», Федеральной Программы по поддержке ведущих научных школ (НШ 4531.2008.2), а также поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект № 09-02-00136а, 08-02-00032а и 08-02-90001-Бел-а).

Summary

K.V. Ivanin, A.V. Leontyev, V.S. Lobkov, V.G. Nikiforov, G.M. Safiullin, V.V. Samartsev. Femtosecond Four-Wave Mixing Spectroscopy on CdS Crystal.

Femtosecond four-wave mixing coherent specstroscopy in CdS crystal on 790 nm at room temperature is analyzed. It is stated that the optical dephasing time is equal to 180 fs. Some specific features of the coherent responses' decay curves indicate that this optical dephasing is due to exciton-exciton interaction. The stimulated photon echo decay curves appear to have a

fast decay component (the time constant of approximately 4.5 ps), in case when the energy of exciting pulses exceeds the threshold value of 0.4 μJ.

Key words: femtosecond spectroscopy, four-wave mixing, semiconductor, dephasing time, room temperature.

Литература

1. *Козлов С.А., Самарцев В.В.* Оптика фемтосекундных лазеров. – СПб.: ИТМО, 2007. – 218 с.

2. *Becker P.C., Fragnito H.L., Brito Cruz C.H., Fork R.L., Cunningham J.E., Henry J.E., Shank C.V.* Femtosecond photon echoes from band-to-band transitions in GaAs // Phys. Rev. Lett. – 1988. – V. 61, No 14. – P. 1647–1649.

3. *Yajima T., Taira Y.*Spatial optical parametric coupling of picosecond light pulses and transverse relaxation effect in resonant media // J. Phys. Soc. Jpn. – 1979. – V. 47. – P. 1620–1624.

4. *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.

5. *Hillmann F., Voigt J.,Redlin H.* Two-photon excited photon echo in CdS // App. Phys. Lett. – 2000. – V. 77, No 25. – P. 4181–4183.

6. *Нолль Г., Зигнер У., Шевель С.Г., Гёбель Э.* Пикосекундное разрешенное во времени фотонное эхо в системе собственных возбуждений среды (смешанные кристаллы $CdSe_xS_{1-x}$ // Письма ЖЭТФ – 1990. – Т. 51, № 7. – С. 361–364.

7. *Konturov S.V. ,Lobkov V.S., Salikhov K.M., Samartsev V.V., Safiullin G.M., Zuikov V.A.* Femtosecond photon echo in dye-doped polymer film at liquid nitrogen temperature // Laser Phys. Lett. – 2005. – V. 2, No 1. – P. 21–24.

8. *Lobkov V.S., Salikhov K.M., Samartsev V.V., Safiullin G.M., Zuikov V.A.* Femtosecond photon echo in dye-doped polymer film at room temperature // Laser Phys. Lett. – 2006. – V. 3, No 1. – P. 26–30.

9. *Lobkov V.S., Leontiev A.V., Salikhov K.M., Samartsev V.V., Safiullin G.M., Zuikov V.A.* Stimulated femtosecond photon echo in a dye-doped polymer film at room temperature // Laser Phys. Lett. – 2006. – V. 3, No 10. – P. 485–489.

10. *Lobkov V.S., Leontiev A.V., Salikhov K.M., Samartsev V.V., Safiullin G.M., Vorobyev A.Yu., Zuikov V.A.* Femtosecond primary and stimulated photon echoes in a dye-doped polymer film at room temperature // Laser Phys. Lett. – 2007. – V. 17, No 10. – P. 332–338.

11. *Lobkov V.S., Petrushkin S.V., Salikhov K.M., Samartsev V.V., Safiullin G.M., Vorobyev A.Yu.* Femtosecond photon echo in a dye-doped polymer film and the possibility of coherent optical cooling // Laser Phys. Lett. – 2007. – V. 17, No 5. – P. 647–651.

12. *Weiner A.M., Ippen E.P.* Novel transient scattering technique for femtosecond dephasing measurements// Opt. Lett. – 1984. – V. 9, No 2. – P. 53–55.

Поступила в редакцию
26.12.08

Иванин Константин Валерьевич – аспирант Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

Леонтьев Андрей Владимрович – аспирант Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

Лобков Владимир Сергеевич – кандидат физико-математических наук, заведующий лабораторией быстропротекающих молекулярных процессов физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

Никифоров Виктор Геннадьевич – кандидат физико-математических наук, научный сотрудник Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

Сафиуллин Георгий Маратович – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

Самарцев Виталий Владимирович – доктор физико-математических наук, профессор, заведующий лабораторией нелинейной оптики Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: *samartsev@samartsev.com*