

ЛАЗЕРНАЯ ГИПЕРЗВУКОВАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ МОНОКРИСТАЛЛА ГЕРМАНИЯ

Н. В. Чигарев

*Международный лазерный центр Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

Д. Ю. Паращук, Ю. С. Пан***

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

В. Э. Гусев

*Laboratoire de Physique de l'Etat Condense, UMR-CNRS 6087
Universite du Maine, 72085, Le Mans, France*

Поступила в редакцию 14 августа 2001 г.

С помощью фотодифракционного метода исследованы профили гиперзвуковых импульсов в монокристалле германия с субнаносекундным разрешением по времени. Показано, что гиперзвуковые импульсы возбуждаются за счет электронно-деформационного взаимодействия фотовозбужденных носителей с кристаллической решеткой, что намного эффективнее термоупругого механизма возбуждения звука. Исследована эволюция профилей гиперзвуковых импульсов за счет эффектов дифракции и акустического поглощения. Из анализа профилей импульсов гиперзвука получены оценки коэффициентов амбиполярной диффузии фотовозбужденных носителей и затухания гиперзвука. Установлено, что фронт фотовозбужденной электронно-дырочной плазмы в германии движется со сверхзвуковой скоростью при комнатной температуре.

PACS: 78.47.+p, 78.20.Nr, 81.70.Cv

1. ВВЕДЕНИЕ

Методами пикосекундной оптоакустики измеряют скорость звука и толщину тонких пленок полупроводников [1, 2], диэлектриков [3], проводящих полимеров [2, 3], металлов [2, 4] и параметры их интерфейсов [5]. Анализ гиперзвуковых эхо-сигналов, возбуждаемых с помощью субпикосекундных лазерных импульсов в тонкой пленке α -SiO₂ позволил определить поглощение звука в частотном диапазоне до сотен гигагерц [6]. При этом пикосекундная оптоакустика дает возможность проследить за про-

странственно-временной динамикой передачи электронной энергии в когерентные фононы, т. е. в звук, а также выявить нетепловые механизмы возбуждения гиперзвука [7, 8]. С другой стороны, известны попытки отследить воздействие импульса гиперзвука на электронный спектр, так, в работе [9] сообщается о снятии симметричного запрета на дипольно-запрещенные переходы в проводящих полимерах под воздействием гиперзвукового импульса. Пикосекундная оптоакустика позволяет получить также ценную спектроскопическую информацию об электронной структуре образца, так, например, в [10] сообщается о вкладе межзонных переходов в металлических пленках при детектировании гиперзвукового импульса за счет вызванных им изменений коэффициента отражения образца.

Оптические методы регистрации оказались осо-

*E-mail: paras@polys.phys.msu.su

** Настоящий адрес: X. Y. Pan, State Key Laboratory for Artificial Structure and Mesoscopic Physics, Peking University, Beijing 100871, China.

бенно эффективными для детектирования гиперзвуковых импульсов. Наиболее популярный и первый метод в пикосекундной оптоакустике [1] заключается в измерении модуляции коэффициента отражения образца [3, 6, 9, 10], наведенной коротким акустическим импульсом, с использованием известного приема «возбуждение—зондирование», позволяющего реализовать временное разрешение на уровне длительности лазерных импульсов. С использованием этого же приема в пикосекундной оптоакустике применяются также более прямые методы, в которых с помощью пучка зондирования в дефлекционной [4] или в интерференционной [5, 11] схемах можно зарегистрировать механическое смещение поверхности образца. Отметим, что, как правило, в пикосекундной оптоакустике измеряют время прихода импульса звука и его амплитуду, а профиль импульса подробно удается измерить лишь в редких случаях (см., например, [10]) из-за недостаточного соотношения сигнал—шум как в большинстве известных работ [1–6, 12]. Вместе с тем, профиль импульса несет информацию как о деталях процесса фотовозбуждения звука, так и об особенностях его распространения. Цель настоящей работы — разработка метода лазерной гиперзвуковой спектроскопии для измерения формы сверхкоротких акустических импульсов и его применение для исследования нетепловых механизмов фотоакустического преобразования в полупроводниках на примере монокристалла Ge. Мы показываем, что на пикосекундной временной шкале при умеренных уровнях возбуждения электронно-деформационный механизм возбуждения звука [1, 7, 13] оказывается намного более эффективным, чем универсальный термоупругий механизм. При этом из особенностей формы акустического импульса можно получить информацию об источнике звука — движущейся неравновесной электронно-дырочной плазме и, в частности, об ее коэффициенте диффузии [14, 15]. Так, используя разработанный нами метод гиперзвуковой спектроскопии, мы показали, что фронт расширяющейся фотовозбужденной электронно-дырочной плазмы в Ge может двигаться со сверхзвуковой скоростью [14]. В первой части статьи представлена модель фотовозбуждения и распространения гиперзвука (разд. 2), далее изложены основные принципы метода измерений и его экспериментальная реализация (разд. 3), затем представлены экспериментальные результаты (разд. 4), их анализ и обсуждение (разд. 5). В Заключении сформулированы основные результаты работы.

2. МОДЕЛЬ ВОЗБУЖДЕНИЯ И РАСПРОСТРАНЕНИЯ ГИПЕРЗВУКА

При импульсном оптическом воздействии на полупроводники источниками звука служат пространственно-временные поля температуры решетки T и концентрации неравновесной электронно-дырочной плазмы N , которым отвечают соответственно термоупругий и электронно-деформационный механизмы возбуждения звука¹⁾. Мы использовали одномерную модель возбуждения звука на механически свободной поверхности, поскольку в нашем эксперименте характерные глубины поглощения света, диффузии тепла и электронно-дырочной плазмы по порядку величины меньше 1 мкм, а диаметр пучка возбуждения на поверхности больше 20 мкм. Уравнение продольных звуковых волн для механического смещения U в полубесконечной однородной среде имеет вид [7, 8]

$$U_{tt} - c_a^2 U_{xx} = (dN_x - K\beta T_x) / \rho, \quad (1)$$

где c_a — скорость продольного звука, K — модуль всестороннего сжатия, β — коэффициент объемного расширения, d — сумма деформационных потенциалов электронов и дырок, ρ — равновесная плотность образца; граничные условия на свободной поверхности следующие:

$$\begin{aligned} -c_a^2 U_x(t, x=0) &= \\ &= (dN(t, x=0) - K\beta T(t, x=0)) / \rho, \end{aligned} \quad (2)$$

индексы x и t обозначают производные соответственно по координате и времени.

При субнаносекундных временах можно считать, что возбуждающий фотон с энергией $h\nu_L$, превышающей ширину запрещенной зоны E_g , поглощаясь, рождает электронно-дырочную пару с энергией E_g при мгновенном выделении энергии $h\nu_L - E_g$ в нагрев кристаллической решетки на интересующей нас временной шкале. Пространственно-временная динамика концентрации неравновесной электронно-дырочной плазмы и температуры описывается диффузионными уравнениями с соответствующими коэффициентами диффузии D и χ :

$$N_t - DN_{xx} = \frac{(1-R)\alpha I}{h\nu_L} \exp(-\alpha x) f(t/\tau_L), \quad (3)$$

¹⁾ В пьезоэлектрических полупроводниках возможно также возбуждение звука через обратный пьезоэффект [8], при котором фотовозбужденная электронно-дырочная плазма экранирует электрическое поле в образце.

$$T_t - \chi T_{xx} = \frac{1-R}{C}(1 - E_g/h\nu_L)\alpha L \times \exp(-\alpha x)f(t/\tau_L), \quad (4)$$

где R — коэффициент отражения пучка возбуждения поверхностью образца, α — коэффициент поглощения света на длине волны возбуждения, I — интенсивность импульса возбуждения, $f(t/\tau_L)$ — огибающая лазерного импульса длительностью τ_L , C — изобарическая теплоемкость на единицу объема. Граничное условие для уравнений (3) и (4) — нулевой диффузионный поток на поверхности ($x = 0$).

Данная модель не учитывает возможных нелинейных эффектов — их вклад был несуществен в наших экспериментах (см. п. 4.2), а также не учитывает процессы рекомбинации электронно-дырочной плазмы. Анализ показывает [16], что скорости различных процессов рекомбинации в Ge (поверхностной, линейной и Оже) на нашей временной шкале 0.1–1 нс малы и не влияют на профиль импульсов гиперзвука. Заметим, что поверхностную рекомбинацию можно не учитывать, пока ее скорость меньше скорости звука, что следует как из теории [8], так и из проведенных экспериментов на образцах с соответствующей обработкой поверхности [16].

Приведем справочные параметры кристалла Ge при комнатной температуре, необходимые в дальнейшем: $E_g = 0.65$ эВ, $C = 9$ Дж/см³·К, $\rho = 5.3$ г/см³, $c_a = 5.6 \cdot 10^5$ см/с в направлении [111], $K = 75$ ГПа, $\beta = 1.8 \cdot 10^{-5}$ 1/К, $D = 65$ см²/с, $\chi = 0.35$ см²/с [17]; $d = -K\partial E_g/\partial P \approx -5$ эВ [18]. Оптические коэффициенты поглощения для длин волн возбуждения $\lambda_1 = 1064$ и $\lambda_2 = 532$ нм (соответственно $h\nu_L = 1.17$ и 2.33 эВ) $\alpha(\lambda_1) \approx 1.4 \cdot 10^4$ [18], $\alpha(\lambda_2) \approx 5.3 \cdot 10^5$ см⁻¹ [19], $R \approx 0.5$. В наших экспериментах $I\tau_L \leq 50$ мкДж/см², откуда из уравнения (3) получаем верхнюю оценку для концентрации электронно-дырочной плазмы $N \approx 10^{18}$ см⁻³.

Профили импульсов гиперзвука находились из аналитического решения уравнений (1)–(4) в спектральной форме [7, 8] с последующим обратным преобразованием Фурье. Для электронно-деформационного механизма источник звука дается уравнением (3), а решение задачи (1)–(3) вне области возбуждения звука, задаваемой максимальной из длин (α^{-1} , $(D\tau_L)^{1/2}$), имеет вид [7]

$$U(\omega) = U_0 \frac{m_D \omega_D}{\omega_D + i\omega} \left[\frac{\omega_D}{\omega^2 + m_D^2 \omega^2} + \frac{1}{\sqrt{-i\omega_D} (m_D \sqrt{\omega_D} + \sqrt{-i\omega})} \right] f(\omega), \quad (5)$$

где $\omega_D = c_a^2/D$ — характерная частота, на которой сравниваются волновые векторы звуковой и диффузионной волн, $m_D = \alpha D/c_a$ — отношение времени распространения звука ко времени диффузии носителей по области поглощения света α^{-1} , $f(\omega) = \exp(-\omega^2 \tau_L^2)$ — спектр огибающей лазерного импульса возбуждения, $U_0 = (1-R)dI\tau_L/(h\nu_L \rho c_a^2)$ — характерное смещение. Из выражения (5) видно, что спектр и, следовательно, временной профиль импульса определяются одним параметром образца — коэффициентом амбиполярной диффузии возбужденных носителей D , если считать что α и c_a заранее известны. Для термоупругого механизма (уравнение (4)) решение имеет вид (5), но с заменой D на χ . При этом характерное смещение $U_0 = -(1-R)(1 - E_g/h\nu_L)K\beta I\tau_L/(C\rho c_a^2)$. Из уравнения (1) видно, что отношение эффективности электронно-деформационного механизма к эффективности термоупругого равно $B = N_x d/(K\beta T_x)$. Из уравнений (3) и (4) и решения (5) при пренебрежении диффузией тепла и свободных носителей за время оптического возбуждения τ_L получаем $B = Cd/(K\beta(h\nu_L - E_g))$. Для λ_1 имеем $B \approx 20$, т. е. электронно-деформационный механизм в Ge более чем на порядок величины эффективнее термоупругого. Ниже покажем, что наши эксперименты согласуются с этой оценкой. Отметим, что приведенная оценка B корректна при умеренных уровнях возбуждения ($N < 10^{19}$ см⁻³), пока можно пренебречь процессами нелинейной рекомбинации, насыщающими линейную зависимость $N(I)$.

Эффекты распространения импульсов гиперзвука учитывались также в спектральном виде. При этом рассчитанный спектр смещения в звуковой волне $U(\omega)$ (выражение (5)) умножался на множитель $K(\omega, x) = K_a(\omega, x)K_d(\omega, x)$ [8], учитывающий соответственно поглощение и дифракцию звука. Здесь

$$K_a(\omega, x) = \exp(-\gamma\omega^2 x/4\pi^2), \quad (6)$$

где коэффициент $\gamma = 2.8$ см⁻¹ · ГГц⁻² для кристаллического Ge в направлении [111] [20]. Дифракция учитывалась в квазиоптическом приближении [21]:

$$K_d(\omega) = \frac{1}{1 + ix/L_d} \exp\left[-\frac{r^2}{a^2(1 + ix/L_d)}\right], \quad (7)$$

где a — радиус акустического пучка при $x \rightarrow 0$ по уровню $1/e$, $L_d = \omega a^2/2c_a$ — характерная дифракционная длина для спектральной компоненты ω . Отметим, что учет дифракции в рамках квазиоптического приближения корректен для длин волн звука мно-

го меньших поперечного размера акустического пучка $\lambda \ll 2a$. Помимо эффектов дифракции и поглощения при анализе распространения импульсов гиперзвука в кристаллах следует учитывать эффект фоновой фокусировки [22], поскольку он меняет амплитудно-фазовые соотношения между спектральными компонентами импульса. Мы оценили влияние фоновой фокусировки на профиль импульсов гиперзвука в экспериментах с образцами, ориентированными в фокусирующем и дефокусирующем направлениях [16]. В пределах нашей точности измерений мы не регистрировали каких-либо отличий в профилях импульсов гиперзвука, поэтому далее мы пренебрегаем эффектом фоновой фокусировки.

3. МЕТОД ИЗМЕРЕНИЙ, ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ СХЕМА, ОБРАЗЦЫ

Идея дефлекционного метода измерений малых смещений поверхности образца [23] заключается в следующем. Акустический пучок выходит на поверхность образца и деформирует ее (рис. 1а). Пробный пучок света фокусируется на область деформации и зеркально отражается от нее, что вызывает малое отклонение оси пучка, пропорциональное углу наклона деформированной поверхности и, следовательно, ее смещению. Малое отклонение пучка регистрируется с помощью позиционно-чувствительного детектора (ПЧД) (см., например, [24, 25]). Отметим существенный недостаток указанной реализации дефлекционного метода: он может давать сигнал, не связанный с механическим смещением поверхности, когда области возбуждения и зондирования находятся на одной поверхности образца [26]. Как будет видно ниже, для наших импульсов гиперзвука

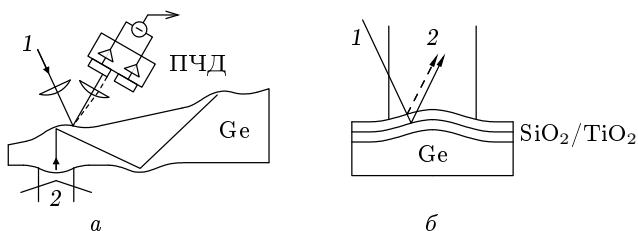


Рис. 1. Схема дефлекционного метода: а) возбуждение и зондирование с противоположных сторон образца, б) зондирование на поверхностях диэлектрического покрытия вблизи области фотовозбуждения: 1 — пучок зондирования, 2 — пучок возбуждения

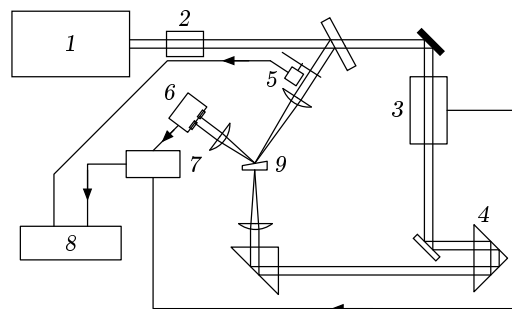


Рис. 2. Схема лазерного дефлекционного спектрометра: 1 — пикосекундный лазер, 2 — нелинейный кристалл, 3 — электрооптический модулятор, 4 — линия задержки, 5 — механический прерыватель, 6 — позиционно-чувствительный детектор, 7 — преобразователь частоты, 8 — синхронный детектор, 9 — образец

эффекты распространения оказывают существенное влияние на их профиль при длинах $x \sim 100$ мкм, поэтому нам было важно получить профиль импульса гиперзвука как можно ближе к области возбуждения. Для этого использовалась схема измерений с возбуждением и зондированием на одной поверхности образца Ge (рис. 1б) [27], но для исключения оптического взаимодействия пучков возбуждения и зондирования на образец Ge напылялось дихроичное зеркало, пропускающее пучок возбуждения и отражающее пучок зондирования, прежде чем он достигает области возбуждения, т. е. поверхности германия.

Нами был разработан метод дефлекционных измерений с чувствительностью к углу наклона лазерного пучка ~ 0.1 нрад [28] на основе техники радиочастотного синхронного усиления, что позволяет измерять малые деформации поверхности амплитудой ~ 0.1 пм с временным разрешением на уровне длительности используемых лазерных импульсов. Схема дефлекционного спектрометра показана на рис. 2. В качестве источника излучений возбуждения и зондирования применялся пикосекундный непрерывно-накачиваемый Nd:YAG-лазер с удвоителем частоты, работающий на двух длинах волн $\lambda_1 = 1064$ и $\lambda_2 = 532$ нм. Длительность импульсов на длине волны λ_1 , следующих с частотой повторения 100 МГц, была $\tau_L \approx 100$ пс. Пучки возбуждения и зондирования фокусировались на поверхность образца линзами в пятна с характерным размером соответственно в диапазонах 20–100 и 15–20 мкм. Поверхностная плотность энергии возбуждения менялась от 0 до 50 мкДж/см². Подробности метода

фоторегистрации даны в [16, 29, 30].

В качестве образцов использовались пластины нелегированного монокристаллического германия, ориентированные по направлению [111]. Исследовались три типа образцов: пластины толщиной ≈ 5 мм, отполированные с одной стороны с оптической точностью, аналогичная пластина, на оптически обработанную грань которой были напылены многослойные диэлектрические покрытия (дихроичные зеркала) (рис. 1б), клиновидные пластины (рис. 1а) с минимальной толщиной ≈ 100 мкм, оптически обработанные с двух сторон. Образец с покрытиями имел три площадки с числом чередующихся слоев TiO_2 и SiO_2 $m = 8, 18$ и 36 . Покрытие хорошо пропускало излучение возбуждения ($\lambda_1 = 1064$ нм) и имело коэффициент отражения излучения зондирования ($\lambda_2 = 532$ нм) $\approx 90\%$ для покрытия с числом слоев $m = 8$ и $\geq 99\%$ для покрытий, имеющих $m = 18$ и 36 . Толщины слоев покрытия составляли $l_1 = 0.18$ мкм для SiO_2 и $l_2 = 0.12$ мкм для TiO_2 , что рассчитывалось из оптической толщины слоев $\lambda_2/2$. Клиновидные пластины имели угол между гранями $\approx 3^\circ$ для исключения интерференции акустического импульса, отражающегося от границ образец-воздух, и дающего эхо-сигналы в канале зондирования.

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

4.1. Фотовозбуждение гиперзвука

Для зондирования гиперзвука в области его фотовозбуждения была использована схема, приведенная на рис. 1б с образцом первого типа (без покрытия). В канале зондирования были зарегистрированы два сигнала: дефлекционный сигнал $\delta\theta(t)$ и сигнал фотоиндуцированного отражения поверхности $\delta R(t)$. Сигнал $\delta R(t)$ детектировался одной из секций ПЧД, на которую фокусировался пробный пучок. Профили измеренных сигналов $\delta\theta(t)$ и $\delta R(t)$ приведены на рис. 3. Пиковое значение относительного изменения коэффициента отражения составило $\delta R(t)/R \approx -2 \cdot 10^{-4}$, дефлекционный сигнал $\delta\theta(t)$ давал относительное изменение фототока того же уровня. Характерной особенностью зарегистрированных сигналов является резкий фронт с длительностью ~ 100 пс вблизи точки временного совпадения импульсов возбуждения и зондирования. Из рис. 3 видно практически полное совпадение профилей как на фронте, так и при убывании импульса. Следовательно, дефлекционный сигнал не связан с механическим смещением поверхности образ-

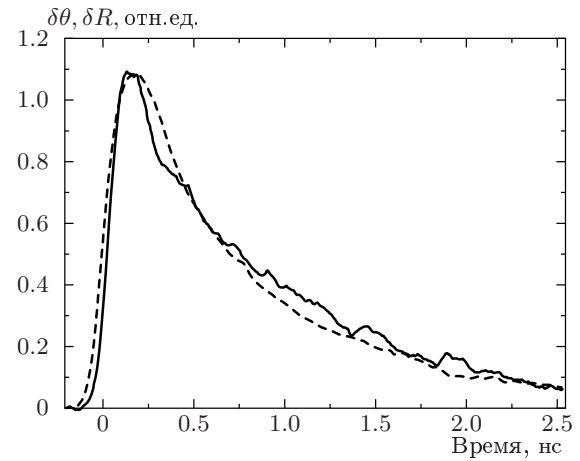


Рис. 3. Динамика дефлекционного сигнала $\delta\theta$ (сплошная линия) и коэффициента отражения поверхности δR (штриховая кривая) при измерениях в области фотовозбуждения

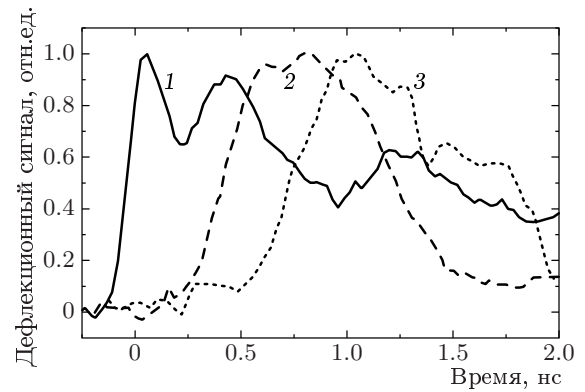


Рис. 4. Дефлекционные сигналы от образца с диэлектрическим покрытием, имеющим число слоев: кривая 1 — $m = 8$, 2 — $m = 18$, 3 — $m = 36$

ца, а обусловлен оптическим взаимодействием излучений возбуждения и зондирования на поверхности образца [26]. Как показано в [16, 26], этот дефлекционный сигнал связан с поперечным градиентом фазы фотоиндуцированного комплексного коэффициента отражения. Для исключения оптического взаимодействия пучков возбуждения и зондирования был проведен эксперимент с образцами Ge с дихроичным покрытием. Дихроичное зеркало позволяло пространственно отделить область зондирования от области возбуждения на расстояние ~ 1 мкм и тем самым сильно подавить эффект оптического взаимодействия пучков возбуждения и зондирования. На рис. 4 представлены зависимости дефлекционного сигнала от времени для трех покрытий различной

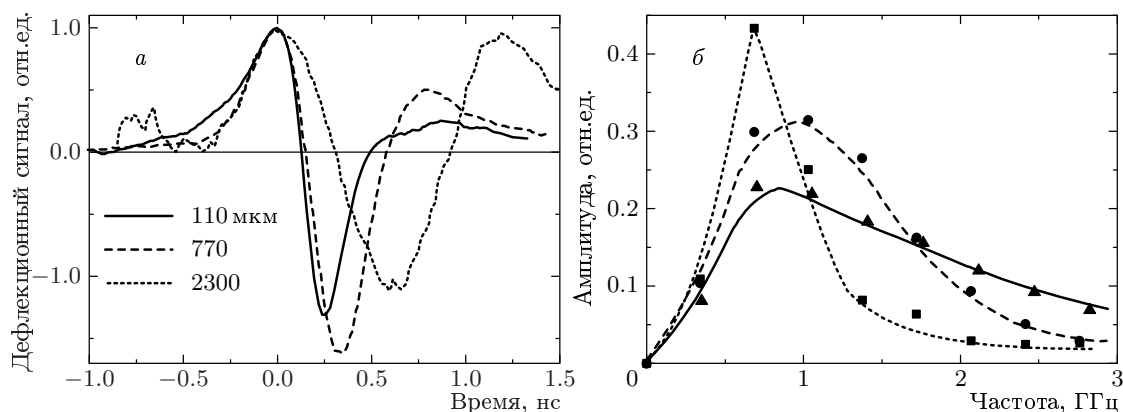


Рис. 5. Дефлекционные сигналы для различных длин распространения акустического импульса x (а) и их спектры (б)

толщины. Покрытие с числом слоев $m = 8$ (кривая 1) пропускало 10 % излучения зондирования, что давало пик дефлекционного сигнала в области нулевой задержки, профиль которого соответствует дефлекционному сигналу, измеренному в области фотовозбуждения (рис. 3). Второй пик на кривой 1 имеет временную задержку ≈ 0.3 нс по отношению к первому и связан с деформацией диэлектрического покрытия фотовозбужденным акустическим импульсом. Положение максимума акустических сигналов (второй и третий пик на кривой 1, пики на кривых 2 и 3) соответствует времени задержки распространения звука по толщине покрытия $\tau = lm/c_a$, где $c_a \approx 7 \cdot 10^5$ см/с — средняя скорость звука в покрытии, $l = (l_1 + l_2)/2$ — средняя толщина слоя покрытия. Третий пик на кривой 1, появляющийся через ≈ 1.3 нс после возбуждения, мы связываем с тройным проходом акустического импульса по толщине многослойного покрытия. На рис. 4 видно, что длительность переднего и заднего фронтов акустического импульса увеличивается с ростом числа слоев диэлектрического покрытия.

Таким образом, в эксперименте с зондированием и возбуждением на одной поверхности образца, на которую нанесено дихроичное зеркало, нам удалось зарегистрировать смещение слоев зеркала, вызванное воздействием акустического импульса, возбужденного вблизи поверхности германия.

4.2. Распространение гиперзвука

Рассмотрим результаты экспериментов, проведенных с клиновидным образцом, где возбуждение

и зондирование проводилось на противоположных гранях (рис. 1а). Дефлекционный сигнал, соответствующий одному проходу акустического импульса через образец (длина пути $x \approx 110$ мкм), представлен сплошной линией на рис. 5а. Полученная из экспериментальных данных характерная пиковая амплитуда смещения поверхности составляла величину ≈ 5 пм, что близко к рассчитанному значению в рамках приведенной выше модели электроно-деформационного механизма (формула (5)). Также на рис. 5а представлены акустические импульсы, прошедшие путь $x \approx 770$ и 2300 мкм. Длина пути, пройденного акустическим импульсом, рассчитывалась из временной задержки дефлекционного сигнала относительно импульса возбуждения. Импульс, прошедший расстояние 110 мкм, имеет двухполярный профиль, уширяющийся с увеличением пройденного расстояния (рис. 5а). Отметим, что длительность фронта гиперзвукового импульса слабо зависела от длины распространения и составляла ≈ 250 пс по уровню $1/e$. Максимум спектра акустического импульса находился вблизи значения 1 ГГц для всех длин распространения (рис. 5б).

Эффекты распространения заметно меняют профиль акустического импульса: поглощение звука ослабляет высокочастотные компоненты спектра импульса (формула (6)), а дифракция (формула (7)) — низкочастотные, как видно на рис. 5б. При этом поглощение звука приводит к уширению переднего и заднего фронтов импульса, а дифракция в основном сводится к дифференцированию импульса. Действительно, для данной спектральной компоненты импульса ω при $x \gg L_d$ формула (7) описывает дифференцирование профиля по времени на оси

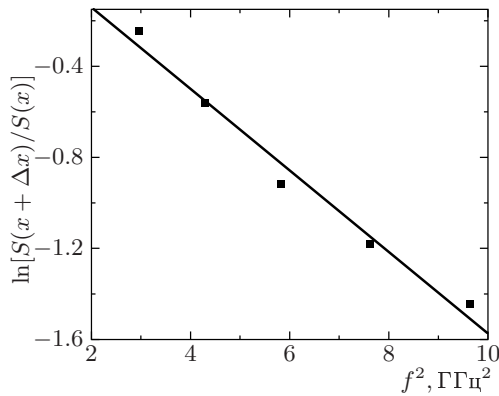


Рис. 6. Отношение высокочастотных компонент спектров из рис. 5б для $x = 770$ и 110 мкм, $\Delta x = 660$ мкм

пучка ($r = 0$). Из высокочастотных (> 1 ГГц) компонент спектра акустического импульса (рис. 5б), соответствующих различным длинам распространения, был рассчитан (рис. 6) коэффициент поглощения γ (формула (6)), составивший $3 \text{ см}^{-1} \cdot \text{ГГц}^{-2}$ [16], что соответствует справочному значению [20].

Профиль акустического сигнала не менялся при изменении энергии импульса возбуждения в диапазоне 5–50 мкДж/см², а его амплитуда зависела от нее линейно [16]. Следовательно, различные эффекты нелинейности были несущественны для исследованного диапазона уровней возбуждения ($N \sim 10^{17} - 10^{18} \text{ см}^{-3}$).

4.3. Эффективность термоупругого и электронно-деформационного механизмов

На рис. 7 представлены профили гиперзвуковых импульсов, полученные для двух длин волн возбуждения $\lambda_1 = 1064$ и $\lambda_2 = 532$ нм. Они близки, что указывает на почти одинаковую пространственно-временную локализацию акустических источников, несмотря на то что длины оптического поглощения в германии отличаются более чем на порядок $\alpha^{-1}(\lambda_1) \gg \alpha^{-1}(\lambda_2)$. Действительно, глубина термодиффузии за время возбуждения $L_T = (\chi\tau_L)^{1/2} \approx 0.1$ мкм, при этом глубина диффузии электронно-дырочной плазмы на порядок выше, $L_N = (D\tau_L)^{1/2} \approx 1$ мкм, причем $L_N \approx \alpha^{-1}(\lambda_1)$. Следовательно, области локализации фотовозбужденной электронно-дырочной плазмы для возбуждения на λ_1 и λ_2 на временах $\sim \tau_L$ примерно одинаковы, а области нагрева, задаваемые максимальной из длин (L_T, α^{-1}), сильно различаются. Таким образом, мы заключаем, что основной вклад

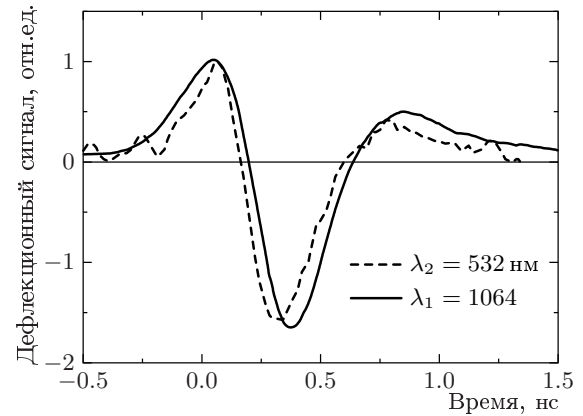


Рис. 7. Профили импульсов гиперзвука для длин волн возбуждения λ_1 и λ_2 , полученные в клиновидном образце при длине распространения $x \sim 100$ мкм

в формирование импульсов гиперзвука на λ_1 и λ_2 дает электронно-деформационный механизм.

Для более прямого сравнения эффективностей термоупругого и электронно-деформационного механизмов оптоакустического отклика был проведен эксперимент по возбуждению звука на λ_1 в образце Al–Ge, в котором пленка Al толщиной в десятки нанометров была напылена на одну из граней пластины Ge. Пучок возбуждения падал на поверхность Al. При этом оптоакустический сигнал, детектируемый по схеме на рис. 1а, уменьшился примерно в 30 раз. Поскольку пленка Al была непрозрачна, акустически тонкая и в первом приближении термически тонкая, можно полагать, что источником звука в образце Al–Ge служит нагрев пленкой Al приповерхностной области образца Ge [31]. С учетом разных коэффициентов отражения Ge и Al на длине волны возбуждения λ_1 мы получили [31], что эффективность термоупругого механизма примерно на порядок меньше, чем электронно-деформационного механизма на нашей временной шкале. Этот результат согласуется с оценкой, сделанной в разд. 2.

5. АНАЛИЗ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

В этой части статьи мы сравним профили импульсов гиперзвука, полученные в эксперименте (разд. 4) с рассчитанными в рамках модели для описания электронно-деформационного механизма возбуждения гиперзвука (разд. 2) с учетом его дифракции и поглощения.

5.1. Детектирование гиперзвука на многослойном покрытии

На рис. 8 приведены рассчитанный по формуле (5) профиль импульса гиперзвука вблизи области возбуждения ($x \rightarrow 0$) и для сравнения динамика дефлекционного сигнала, зарегистрированного на германиевой пластине с числом напыленных слоев покрытия $m = 18$. Различие экспериментальной и модельной динамики хорошо видно: в эксперименте на образце с покрытиями регистрировался импульс с более уширенными передним и задним фронтами по сравнению с тем, что наблюдается для модельной.

Наблюдаемую временную задержку и увеличение длительности дефлекционного сигнала (рис. 4) при измерениях на образце с покрытиями мы связываем с двумя факторами: оптическим и акустическим. Первый обусловлен особенностями отражения пучка зондирования от многослойного диэлектрического зеркала. Действительно, оптический импульс зондирования отражается не только дальним от поверхности слоем германия, но и проникает на глубину порядка 10 слоев. Коэффициент отражения излучения зондирования от интерфейса $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ по амплитуде составляет заметную величину $(n_1 - n_2)/(n_1 + n_2) = 0.22$, где $n_1 = 1.46$ и $n_2 = 2.3$ — показатели преломления соответственно SiO_2 и TiO_2 . Таким образом, дефлекционный сигнал, формируемый отражениями от многих слоев зеркала, содержит вклады от слоев, разнесенные на характерное время прохождения акустического импульса по одному слою. Для пары слоев $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ среднее время задержки на слой со-

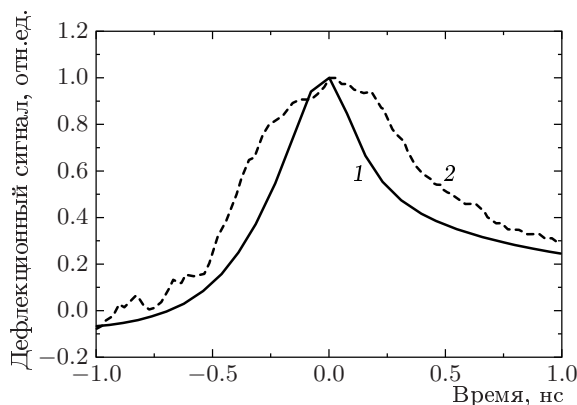


Рис. 8. Расчетный профиль импульса гиперзвука вблизи области фотовозбуждения (1) и динамика дефлекционного сигнала для образца с покрытием с числом слоев $m = 18$ (2)

ставляет $\tau = l/c_a \approx 40$ пс. Заметим, что временная задержка распространения света по толщине покрытия на три порядка меньше задержки распространения звука и ею можно пренебречь. Второй фактор связан с интерференцией акустического импульса, возникающей в многослойном покрытии за счет различия акустических импедансов SiO_2 и TiO_2 , составляющих соответственно $Z_1 = 3.4 \cdot 10^6$ и $Z_2 = 1.5 \cdot 10^6$ г·см⁻²·с⁻¹. Различие импедансов SiO_2 и TiO_2 дает заметный коэффициент отражения звука от интерфейса $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$, составляющий $(Z_1 - Z_2)/(Z_1 + Z_2) \approx 0.4$ по амплитуде. Ясно, что указанные два фактора, т.е. оптический и акустический, будут приводить к временной задержке и уширению дефлекционного сигнала с характерными временами, определяемыми временами прохождения звука по толщине покрытия $m\tau$ и по глубине формирования отраженного сигнала $\sim 10\tau$. Далее, использованная модель возбуждения звука на свободной поверхности германия (формулы (1) и (2)), вообще говоря, справедлива только для акустически тонкого покрытия, т.е. с толщиной $ml \ll \lambda$, где λ — характерная длина звуковой волны. В наших условиях в германии возбуждается широкополосный акустический импульс с максимумом спектральной плотности на длине волны ≈ 5 мкм (см. спектры на рис. 5б). Следовательно, даже в случае самого тонкого покрытия с числом слоев $m = 8$ ($ml \approx 2.4$ мкм) приближение акустически тонкого покрытия хорошо выполняется только для длинноволновых компонент гиперзвукового импульса, поэтому используемая модель возбуждения звука на свободной поверхности германия не вполне корректна. Заметим, что на экспериментальных импульсах видны переколебания (рис. 4), связанные, по-видимому, со сложной картиной взаимодействия импульса зондирования с гиперзвуковым импульсом в многослойном покрытии. Детальный анализ измеренного дефлекционного сигнала требует учета многолучевой интерференции как света, так и звука в многослойном покрытии, а также их взаимодействия, что выходит за рамки настоящей работы.

Таким образом, многослойное диэлектрическое покрытие, т.е. дихроичное зеркало для пучков возбуждения и зондирования, напыленное на полупроводниковый образец, позволяет пространственно разделить области возбуждения гиперзвука и его детектирования и тем самым подавить мешающий дефлекционный сигнал, не связанный с механическим смещением поверхности (рис. 4, первый пик на кривой 1). В то же время, хотя временной профиль измеряемого дефлекционного сигнала в основном за-

дается импульсом гиперзвука, возбуждаемым в Ge, эффекты интерференции звука и света в многослойном зеркале не позволяют адекватно получить временной профиль последнего в рамках используемой модели, изложенной в разд. 2. Тем не менее из экспериментов на образце с покрытием определенно следует, что возбуждаемый в германии импульс гиперзвука — однополярный, тогда как измеренные импульсы, прошедшие $x \geq 100$ мкм (рис. 5а) — двухполярные, откуда следует, что эффекты распространения существенно меняют профиль импульса гиперзвука на сравнительно малых длинах.

5.2. Распространение гиперзвука

Здесь мы сопоставим расчетные профили импульсов гиперзвука с экспериментальными, полученными на клиновидном образце. Выше было показано (разд. 4), что поглощение звука уширяет профиль экспериментального импульса и из анализа его спектра для различных длин распространения был найден коэффициент поглощения звука $\gamma \approx 3 \text{ см}^{-1} \cdot \text{ГГц}^{-2}$. Величина γ такова, что для низкочастотных спектральных компонент (≤ 1 ГГц) акустических импульсов поглощением звука можно пренебречь для исследованного диапазона длин распространения (< 3 мм). Следовательно, существенный эффект деформации профиля импульса, помимо уширения, может давать дифракция. На основе модели для описания электронно-деформационного механизма были рассчитаны импульсы гиперзвука (см. рис. 3 в [14]) с учетом дифракции и поглощения (формулы (5)–(7)) для известных параметров образца Ge (см. разд. 2). Было получено хорошее соответствие фронтов модельных и экспериментальных импульсов (рис. 5а) для разных длин распространения, однако профили расчетных и измеренных импульсов согласуются существенно меньше. Наиболее сильное несогласование наблюдается для $x = 110$ мкм. Расчетный импульс имеет слабо выраженную отрицательную фазу, а экспериментальный — быструю отрицательную фазу с характерной длительностью < 0.5 нс. Вместе с тем при дифракции расчетный импульс приобретает более выраженную отрицательную фазу. Однако ее длительность даже при больших длинах дифракции существенно меньше, чем в эксперименте (см. рис. 3 в [14]).

Мы связываем эти различия с некорректным описанием дифракции низкочастотных компонент (< 1 ГГц) в рамках квазиоптического приближения, справедливого при условии $\lambda = 2\pi c_a/\omega \ll 2a$ (формула (7)). Действительно, из спектров модель-

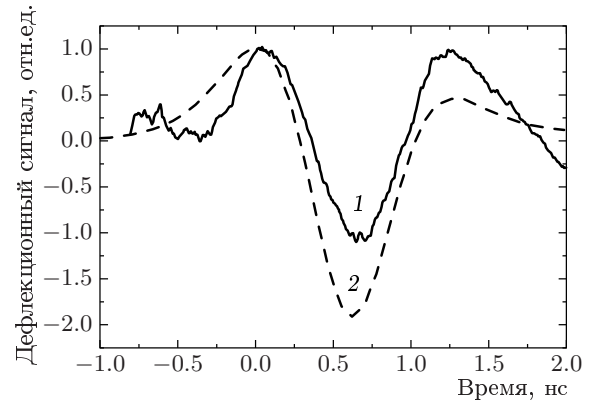


Рис. 9. Экспериментальные (1) и расчетные (2) импульсы гиперзвука для $x = 2300$ мкм

ного импульса без учета эффектов распространения ($x \rightarrow 0$) следует, что характерная частота концентрации энергии модельного импульса составляет ≈ 0.1 ГГц и ей соответствует длина волны гиперзвука примерно равная диаметру акустического пучка ($\lambda \approx 2a$). Сравнение экспериментального импульса с расчетным для большой длины распространения $x = 2300$ мкм (рис. 9) показывает лучшее соответствие, чем для $x = 110$ мкм. Мы связываем это с тем, что при больших x дифракция сильно подавляет низкочастотные компоненты спектра, некорректно описываемые в квазиоптическом приближении. Тем самым, для оставшихся в импульсе спектральных компонент квазиоптическое приближение становится вполне адекватным. Таким образом, мы приходим к выводу, что вторая фаза импульса гиперзвука возникает при его распространении, а не при фотовозбуждении. На это же указывает эксперимент по регистрации акустического импульса на поверхности возбуждения — импульс имеет однополярный профиль (рис. 8). Подчеркнем, что именно однополярный профиль предсказывает используемая нами модель возбуждения звука при $x \rightarrow 0$ (сплошная линия на рис. 8).

5.3. Сверхзвуковое расширение электронно-дырочной плазмы

Особый интерес для нас представляла информация о длительности фронта импульса гиперзвука, поскольку она может дать ответ на вопрос о режиме расширения фотовозбужденной электронно-дырочной плазмы. Этот вопрос активно обсуждается с 80-х годов [32–36] и в предельно кратком виде может быть сформулирован так: мож-

но ли ускорить направленно движущиеся носители заряда в твердом теле до сверхзвуковых скоростей? Наличие звукового барьера для расширяющейся электронно-дырочной плазмы связывают с возможностью обратного влияния испускаемых фононов на фронте концентрации расширяющейся электронно-дырочной плазмы на скорость этого фронта²⁾. В начале 80-х годов проводились низкотемпературные эксперименты по ускорению электронно-дырочных «капель» в монокристаллах Ge [33] и Si [34] до околосвуковых скоростей. Было показано, что капли не ускоряются до сверхзвуковых скоростей. Тем временем, на наш взгляд, более грубые оценки скорости движения электронно-дырочной плазмы, основанные на анализе формы линии комбинационного рассеяния света фотовозбужденной электронно-дырочной плазмы [36], не указывали на наличие звукового барьера, свидетельствуя, что она может двигаться со скоростью порядка фермиевской. В [14] предложен метод оценки скорости звука электронно-дырочной плазмы по длительности фронта возбуждаемого плазмой звукового импульса. Идея этого метода заключается в следующем: поскольку звук формируется на движущемся вглубь от передней поверхности образца фронте концентрации фотовозбужденной электронно-дырочной плазмы, момент прихода акустического импульса на заднюю грань образца будет зависеть от скорости движения этой плазмы. Причем предложенный нами метод может применяться и при диффузионном режиме движения электронно-дырочной плазмы. При этом, как показано в [14, 31], фронт импульса гиперзвука будет приобретать дополнительное уширение, зависящее от скорости диффузии электронно-дырочной плазмы. Под последней понимается эффективная скорость движения фронта концентрации плазмы [14], которая в первый момент после фотовозбуждения равна $V_D = \alpha D$. Таким образом, параметр $m_D = \alpha D/c_a$, введенный в выражении (5), имеет смысл числа Маха, т. е. m_D — отношение эффективной скорости диффузии электронно-дырочной плазмы в первый момент после возбуждения к скорости звука. При длине волны возбуждения $\lambda_1 = 1064$ нм наилучшее соответствие модельных и экспериментальных фронтов гиперзвуковых импульсов получается при $D \approx 50\text{--}70$ см²/с, что соответствует справочному значению. Данному D отвечает число Маха $m_D \approx 1.5$, следовательно,

²⁾ Подробный обзор работ по проблеме звукового барьера и методов оценки скорости движения фотовозбужденной электронно-дырочной плазмы дан в [31].

мы приходим к выводу, что в германии при комнатной температуре реализуется сверхзвуковой режим диффузии электронно-дырочной плазмы. При этом скорость электронно-дырочной плазмы убывает до звуковой за время порядка длительности фронта гиперзвукового импульса τ_D [14], т. е. за ≈ 200 пс. Отличия экспериментального фронта от рассчитанного для режима дозвуковой диффузии видны на рис. 3 в [14]. Отметим, что при длине волны возбуждения $\lambda_2 = 532$ нм число Маха существенно выше 1.5, поскольку $\alpha(\lambda_2) \gg \alpha(\lambda_1)$. Действительно, при возбуждении на λ_2 электронно-дырочная плазма, рождаемая в тонком слое порядка $\alpha^{-1}(\lambda_2) \approx 20$ нм, за время возбуждения диффундирует на характерную глубину $(D\tau_L)^{1/2} \approx 1$ мкм, следовательно, эффективная скорость движения фронта электронно-дырочной плазмы существенно выше звуковой. Сверхзвуковой режим диффузии электронно-дырочной плазмы в Ge возможен при комнатной температуре, поскольку внутреннее давление электронно-дырочной плазмы $Nk_B T$ (k_B — постоянная Больцмана) на три порядка выше давления акустических полей на плазму, $\sim dN U_x \sim dN U/c_a \tau_D$, для характерного в наших экспериментах механического смещения $U \sim 5$ пм. Отметим, что нами выполнены аналогичные эксперименты в монокристаллах Si и GaAs [37], в которых получено, что в Si реализуется дозвуковой режим диффузии электронно-дырочной плазмы, а в GaAs — сверхзвуковой. Таким образом, из анализа формы акустического импульса, возбуждаемого по электронно-дырочному механизму, удастся получить корректную оценку коэффициента диффузии фотовозбужденных носителей.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, разработан метод лазерной спектроскопии конденсированных сред, основанный на детальном измерении и анализе формы широкополосных импульсов гиперзвука с частотами в диапазоне 0.1–3 ГГц. Разработанный метод основан на фотодефлекционной технике измерений с предельной чувствительностью, задаваемой дробовыми шумами фототока. Важным выводом настоящей работы является то, что при умеренных плотностях возбуждения полупроводника ($< 10^{19}$ см⁻³) на субнаносекундной временной шкале доминирует электронно-деформационный механизм возбуждения звука, а не универсальный термоупругий. В работе развит метод оценки диффузии фотовозбужденных носителей из анализа

формы возбуждаемого ими гиперзвукового импульса. Наиболее значимый физический результат данной работы — вывод о сверхзвуковом движении фронта концентрации фотовозбужденной электронно-дырочной плазмы в Ge. Отметим, что быстрая диффузия электронно-дырочной плазмы «размывает» в пространстве акустический источник, т. е. ее фронт, приводя к временному уширению импульсов гиперзвука.

Работа выполнена при финансовой поддержке фонда INTAS-31680.

ЛИТЕРАТУРА

1. C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny et al., Phys. Rev. Lett. **53**, 989 (1984).
2. C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc, Phys. Rev. B **34**, 4129 (1986).
3. G. S. Kanner, Z. V. Vardeny, and B. C. Hess, Phys. Rev. B **42**, 5403 (1990).
4. O. B. Wright and K. Kawashima, Phys. Rev. Lett. **69**, 1668 (1992).
5. C. J. K. Richardson, M. J. Ehrlich, and J. W. Wagner, J. Acoust. Soc. Am. **107**, 1987 (2000).
6. T. C. Zhu, H. J. Maris, and J. Tauc, Phys. Rev. B **44**, 4281 (1991).
7. С. А. Ахманов, В. Э. Гусев, УФН **162**, 3 (1992).
8. В. Э. Гусев, А. А. Карабутов, *Лазерная оптоакустика*, Наука, Москва (1991).
9. G. S. Kanner, S. Frolov, and Z. V. Vardeny, Phys. Rev. Lett. **74**, 1685 (1995).
10. A. Devos and C. Lerouge, Phys. Rev. Lett. **86**, 2669 (2001).
11. B. Perrin, B. Bonello, J. C. Jeannet, and E. Romatet, Prog. Nat. Sci. (China) **S6**, 444 (1996).
12. O. B. Wright and V. E. Gusev, Appl. Phys. Lett. **66**, 1190 (1995).
13. S. M. Avanesyan, V. E. Gusev, and N. I. Zheludev, Appl. Phys. A **40**, 163 (1986).
14. N. V. Chigarev, D. Yu. Paraschuk, X. Y. Pan, and V. E. Gusev, Phys. Rev. B **61**, 15837 (2000).
15. O. B. Wright, B. Perrin, O. Matsuda, and V. E. Gusev, Phys. Rev. B **64**, 081202(R) (2001).
16. Н. В. Чигарев, Дисс. ... канд. физ.-математических наук, МГУ, Москва (1998).
17. *Физические величины*, под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова, Энергоатомиздат, Москва (1991).
18. Landolt-Bernstein, *Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology*. Group III, ed. by O. Mandelung, M. Schulz, and H. Weiss, Springer, New-York (1982), Vol. 17A.
19. D. H. Auston and C. V. Shank, Phys. Rev. Lett. **32**, 1120 (1974).
20. *Акустические кристаллы*, под ред. М. П. Шаскольской, Наука, Москва (1982).
21. М. Б. Виноградова, О. В. Руденко, А. П. Сухоруков, *Теория волн*, Наука, Москва (1990).
22. G. A. Northrop and J. P. Wolfe, Phys. Rev. B **22**, 6196 (1980).
23. M. A. Olmstead, N. M. Amer, S. Kohn et al., Appl. Phys. A **32**, 141 (1983).
24. E. Dieulesaint and D. Royer, *Elastic Wave Propagation*, ed. by M. F. McCarthy and M. A. Hayes, Elsevier, North Holland (1989), p. 17.
25. H. Sontag and A. C. Tam, IEEE UFFC **33**, 500 (1986).
26. J. E. Rothenberg, Opt. Lett. **13**, 713 (1988).
27. Н. В. Чигарев, Д. Ю. Парашук, Ю. С. Пан, Изв. РАН, сер. физ. **64**, 24 (2000).
28. Д. Ю. Парашук, Н. В. Чигарев, Опт. и спектр. **82**, 908 (1997).
29. D. Yu. Paraschuk, T. A. Kulakov, O. Yu. Nedopekin et al., Rev. Sci. Instrum. **68**, 3989 (1997).
30. Н. В. Чигарев, О. Ю. Недопекин, Ю. С. Пан, Д. Ю. Парашук, ПТЭ **41**, 111 (1998).
31. С. Ю. Пан, Дисс. ... канд. физ.-математических наук, МГУ, Москва (2000).
32. A. Forchel, H. Schweizer, and G. Mahler, Phys. Rev. Lett. **51**, 501 (1983).
33. M. A. Tamor, M. Greenstein, and J. P. Wolfe, Phys. Rev. B **27**, 7353 (1983).
34. M. A. Tamor and J. P. Wolfe, Phys. Rev. B **26**, 5743 (1982).
35. И. В. Кукушкин, В. Д. Кулаковский, ФТТ **25**, 2360 (1983).
36. K. T. Tsen and O. F. Sankey, Phys. Rev. B **37**, 4321 (1988).
37. N. V. Chigarev and D. Yu. Paraschuk, Proc. SPIE **4749** (2002).