

Univerzita Karlova v Praze
Matematicko-fyzikální fakulta

DIPLOMOVÁ PRÁCE



Jan Kunc

Dynamika nosičů náboje v CdTe

Katedra chemické fyziky a optiky

Vedoucí diplomové práce: RNDr. Petr Němec, Ph.D.

Studijní program: Fyzika, Kvantová a nelineární optika

in. code. net
Fyzika
72.20
dr. Kunc
538.9

Děkuji RNDr. Petru Němcovi, Ph.D. za odborné a motivující vedení během mé práce a za cenné připomínky a návrhy. Dále děkuji za vysoce hodnotné konzultace Doc. Ing. Janu Francovi, Dr.Sc. při hledání nových směrů experimentálního studia vzorků a Doc. RNDr. Romanu Grillovi, CSc za odbornou konzultaci při interpretaci naměřených dat.

Prohlašuji, že jsem svou diplomovou práci napsal samostatně a výhradně s použitím citovaných pramenů. Souhlasím se zapůjčováním práce.

V Praze dne 21.4. 2006

Jan Kunc

1 Obsah

1	Obsah.....	3
2	Úvod.....	6
3	Spin.....	7
3.1	Zavedení spinu	7
3.2	Spin v pevných látkách	8
3.2.1	Pásové schéma polovodičů.....	8
3.2.2	Výběrová pravidla	9
3.2.3	Spinová polarizace nosičů náboje	10
3.2.4	Injekce spinově polarizovaných nosičů náboje.....	11
3.2.5	Doby spinové relaxace a koherence	11
3.2.6	Relaxační mechanismy spinové koherence.....	12
3.2.7	Měření spinových vlastností elektronů a děr.....	13
3.3	Využití spinu	13
4	CdTe.....	15
4.1	Zakázaný pás.....	15
4.2	Dopování CdTe na n- a p- typ.....	15
4.3	Doby života nosičů náboje	16
4.4	Doba spinové koherence	16
4.5	Difúzní koeficienty.....	17
4.6	Teplotní charakteristiky.....	18
5	Metody časově rozlišené laserové spektroskopie.....	19
5.1	Laserem indukovaná mřížka	19
5.1.1	Laserové svazky a pulzy	19
5.1.2	Dvousvazková interference	20
5.1.3	Materiálová odezva	22
5.1.4	Mřížky v polovodičích	23
5.1.5	Další využití LIG.....	24
5.2	Autodifrakce.....	25
5.2.1	Princip metody	25
5.2.2	Matematický model.....	25
5.2.3	Autodifrakce na tenké mřížce	26
5.3	Metoda excitace a sondování	27
5.3.1	Základní vztahy	27
5.3.2	Rozšířený matematický model	28
6	Studované vzorky.....	32
7	Experimentální výsledky.....	33
7.1	Lineární absorpce	33
7.1.1	Schéma experimentu	33
7.1.2	Určení tepelného kontaktu	33
7.1.3	Teplotní závislost šířky zakázaného pásu	35
7.1.4	Nehomogenost vzorku.....	36
7.2	Autodifrakce.....	37
7.2.1	Schéma experimentu	37
7.2.2	Orbitální doba koherence excitonů při 20 K	38
7.2.3	Orbitální doba koherence volných nosičů náboje při 20 K.....	39
7.2.4	Teplotní závislost orbitální doby koherence volných nosičů náboje	40
7.3	Metoda Excitace a sondování.....	41

7.3.1	Schéma experimentu	41
7.3.2	Měření pod hranou zakázaného pásu (-10 meV)	42
7.3.3	Měření na hraně zakázaného pásu ($+25\text{ meV}$)	53
7.3.4	Měření nad hranou zakázaného pásu ($+65\text{ meV}$)	56
7.3.5	Měření vysoko nad hranou zakázaného pásu ($+113\text{ meV}$)	58
8	Model dynamik $\Delta T/T_0$ při excitaci $+25\text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu a teplotě 300 K	62
8.1	Model kinetických rovnic na pikosekundové časové škále	62
8.2	Studium rekombinačních mechanismů	64
8.2.1	Vliv bimolekulárních a Augerových rekombinačních mechanismů	64
8.2.2	Model dvou hladin v zakázaném pásu	65
8.2.3	Difúzní model – zahrnutí povrchové rekombinace	67
9	Shrnutí výsledků	71
10	Přílohy	73
10.1	Měření pomocí fázově citlivé detekce (Lock-in)	73
10.1.1	Vybrané vlastnosti Fourierovy transformace	75
10.1.2	Měření na základní frekvenci	75
10.1.3	Měření na součtové frekvenci	77
10.2	Výpis zdrojového kódu k teoretickému modelu	80
10.2.1	Model zahrnující bimolekulární a Augerovy procesy včetně pastí	80
10.2.2	Difúzní model	82
11	Literatura	84

Název práce: *Dynamika nosičů náboje v CdTe*

Autor: *Jan Kunc*

Katedra (ústav): *Katedra chemické fyziky a optiky*

Vedoucí diplomové práce: *RNDr. Petr Němec, Ph.D.*

e-mail vedoucího: *nemec@karlov.mff.cuni.cz*

Abstrakt: Tato diplomová práce byla věnována studiu dynamiky nosičů náboje v objemovém CdTe pomocí metod ultrarychlé laserové spektroskopie. Pomocí časově a polarizačně rozlišené metody excitace a sondování a autodifrakce jsme studovali relaxaci a rekombinaci fotoexcitovaných volných nosičů náboje a excitonů v tenkých vzorcích CdTe s tloušťkami 1,5 a 2 μm . Zvláštní důraz byl kladen na určení charakteristických dob, které popisují relaxaci orbitální a spinové koherence při teplotách od 20 do 300 K. Naměřené doby spinové koherence byly pro elektrony i excitony podstatně (30 až 500 krát) delší než odpovídající doby orbitální koherence. To ukazuje, že spinová koherence je značně zajímavá pro aplikace, kde dlouhé koherenční doby jsou zásadní (jak je tomu například při snahách o realizaci kvantového počítače). Dále jsme zjistili, že v těchto tenkých vzorcích CdTe jsou při pokojové teplotě pro dynamiku elektronů rozhodující povrchová rekombinace a difúze nosičů náboje.

Klíčová slova: CdTe, ultrarychlá dynamika nosičů náboje, spin

Title: *Charge carrier dynamics in CdTe*

Author: *Jan Kunc*

Department: *Department of Chemical Physics and Optics*

Supervisor: *RNDr. Petr Němec, Ph.D.*

Supervisor's e-mail address: *nemec@karlov.mff.cuni.cz*

Abstract: This thesis is devoted to carrier dynamics in bulk CdTe studied by methods of ultrafast laser spectroscopy. Using time- and polarization-resolved pump and probe technique and self-diffraction experiment we studied the relaxation and recombination of photoexcited free carriers and excitons in CdTe platelets with a thickness of 1,5 and 2 μm . The special emphasis was given to determination of characteristic times that describe the relaxation of orbital and spin coherence at temperatures from 20 to 300 K. The measured spin coherence times were considerably (from 30 to 500 times) longer than the corresponding orbital coherence times both for electrons and excitons. This shows that the spin coherence is rather appealing for applications where long coherence times are essential (like implementation of quantum computation). The surface recombination and carrier diffusion were identified to be dominant in the room-temperature dynamics of electrons in these platelets of CdTe.

Keywords: CdTe, ultrafast carrier dynamics, spin

2 Úvod

Polovodiče jsou v dnešní době intenzivně studované materiály. V této práci se budeme věnovat objemovému polovodiči CdTe. Tento materiál má v současnosti řadu aplikací v optice a optoelektronice. Mezi nejznámější patří detektory rentgenovského a gama záření [1,2,3,4,5,6,7], kde má díky vysokým protonovým číslům svých složek ($Z(\text{Cd})=48$, $Z(\text{Te})=52$), širokému zakázanému pásu, vysoké pohyblivosti nosičů náboje a vyšší kvantové účinnosti [6] mnohem lepší účinnost než běžně používané křemikové detektory ($Z(\text{Si})=14$). Ty je navíc potřeba chladit na velmi nízké teploty, přičemž detektory založené na CdTe mohou pracovat i při pokojové teplotě, aniž by bylo měření zatíženo příliš velkým šumem. Další slibnou aplikací jsou solární články založené na bázi tenkých vrstev CdTe a CdS [8] s účinností až 16,5% [9,10], kde mimo jiné hraje roli šířka zakázaného pásu, která zhruba odpovídá maximu vyzařovací charakteristiky Slunce [11]. Výhodou je také možnost p [12,13] i n [14,15,16,17] dopování [12], tudíž vytvoření p/n přechodu. Dále lze CdTe využít jako substrát pro HgCdTe [18], pro konstrukci elektrooptických modulátorů [18] (díky vysokému nelineárnímu indexu lomu [19]), pro vysokorychlostní optické procesory v infračervené spektrální oblasti [20], jako ultrarychlé závěrky v časově rozlišených měřeních v rentgenové oblasti (závěrka na odraz) [21] a ve 4-q-bitových kvantových počítačích [22].

Zajímavým materiálem je CdTe také pro nově vznikající obor elektroniky, kde informace není přenášena pomocí náboje elektronu, ale pomocí jeho spinu, a proto se pro její označení používá název spintronika. Přitažlivost CdTe pro spintroniku spočívá zejména v možnosti výroby kompozitu CdMnTe, který lze úspěšně využít pro elektrickou injekci spinově polarizovaných nosičů náboje do jiných polovodičů. Další zajímavou vlastností CdTe je, že má stejnou krystalovou strukturu, ale jiné materiálové parametry než GaAs, který je jednoznačně nejprozkoumanějším materiálem z hlediska dynamiky spinu nosičů náboje. Porovnání spinové relaxace v CdTe a GaAs nám tedy může pomoci při formulaci obecně platných závěrů o tom, do jaké míry je doba relaxace spinu ovlivněna symetrií polovodičů a do jaké míry ji určují příslušné materiálové parametry. Volba materiálu s dlouhou dobou spinové relaxace je totiž zcela zásadní pro veškeré spintronické aplikace, protože tato doba přímo určuje, jak dlouho bude informace zapsaná pomocí spinu v příslušné součástce uchována. Přitažlivost CdTe pro základní výzkum v oblasti spintroniky také spočívá v tom, že spinově citlivé vlastnosti tohoto objemového polovodiče zatím nebyly téměř studovány, a je tedy možné, že se zde objeví nové, zatím nepozorované vlastnosti spinově polarizovaných nosičů náboje.

Znalost dynamiky nosičů náboje v polovodičích je klíčovým faktorem pro hlubší pochopení procesů probíhajících v pevných látkách, a také pro jejich optimalizaci pro rozličné aplikace v optice, optoelektronice a mikroelektronice. Jako velice účinná metoda pro studium dynamiky nosičů náboje v polovodičích se ukazují metody ultrarychlé laserové spektroskopie. Silná korelace mezi optickými a elektrickými vlastnostmi totiž nabízí možnost sledovat dynamiku nosičů náboje v polovodičích s časovým rozlišením stovek femtosekund. Další výhodou těchto metod je, že nevyžadují elektrické kontakty a jsou nedestruktivní.

V této diplomové práci jsem se zaměřil na studium relaxace a rekombinace volných nosičů náboje a excitonů ve vzorcích připravených z objemového CdTe. Zvláštní důraz byl věnován určení charakteristických dob popisujících ztrátu orbitální a spinové koherence spolu s jejich teplotními závislostmi.

3 Spin

3.1 Zavedení spinu [23]

Zavedení spinu se ukázalo jako nutnost již v raném stádiu vzniku kvantové mechaniky. K tomu přispěl především tzv. Sternův-Gerlachův experiment, jehož výsledky nebylo možné interpretovat pomocí do té doby známých fyzikálních vlastností částic. Vzhledem k tomu, že spin se projevoval podobnými vlastnostmi jako orbitální moment hybnosti, začal se také popisovat podobnými operátory a díky tomu se někdy mluví o tzv. vlastním momentu hybnosti.

Velikost spinu je jedna ze základních vlastností částic, stejně tak jako klidová hmotnost nebo elektrický náboj. Jeho velkou zvláštností je, že nemá svou klasickou analogii, jako třeba výše zmíněný orbitální moment hybnosti, ze kterého se spin odvozuje. Spin je vektorová veličina, která se nejčastěji značí S a její rozměr je $[S]=\hbar s$, který je stejný jako rozměr Planckovy konstanty. Místo velikosti spinu se nejčastěji používá kvantové číslo S , které je dáno vztahem (3.1).

$$|S| = \hbar \sqrt{S(S+1)} \quad (3.1)$$

Kvantové číslo S může obecně nabývat hodnot $\{0, 1/2, 1, 3/2, 2, \dots\}$, přičemž částice s celočíselným spinem se nazývají bosony (např. fotony, fonony) a částice s poločíselným spinem se nazývají fermiony (elektrony, díry)¹.

Matematicky se spin popisuje pomocí operátorů $\hat{S}_x, \hat{S}_y, \hat{S}_z, \hat{S}^2$, které mají v kartézské soustavě souřadnic význam spinu do směru osy x, y, z a poslední operátor vyjadřuje velikost spinu. Platí mezi nimi komutační relace (3.2).

$$\begin{aligned} [\hat{S}_x, \hat{S}_y] &= i\hbar \hat{S}_z \\ [\hat{S}_y, \hat{S}_z] &= i\hbar \hat{S}_x \\ [\hat{S}_z, \hat{S}_x] &= i\hbar \hat{S}_y \\ [\hat{S}_x, \hat{S}_x] &= 0 \\ [\hat{S}_y, \hat{S}_y] &= 0 \\ [\hat{S}_z, \hat{S}_z] &= 0 \end{aligned} \quad (3.2)$$

Z komutačních relací (3.2) plyne, že o spinu nelze měřením zjistit více než je jeho velikost a průmět do jedné ze souřadných os. Velikost tohoto průmětu je kvantovaná a nabývá $2S+1$ hodnot o velikostech $\hbar m_s$, kde $m_s \in \{-S, -S+1, \dots, S-1, S\}$. Číslo m_s se nazývá spinové magnetické kvantové číslo.

Se spinovým momentem úzce souvisí magnetický moment, a to přes konstantu γ dle vztahu (3.3).

$$\mathbf{M}_s = \gamma \mathbf{S} \quad (3.3)$$

Konstanta γ se nazývá gyromagnetický poměr a pro elektron je dána vztahem (3.4).

$$\gamma = -\frac{e}{m_e} = -1,759 \times 10^{11} \text{ C.kg}^{-1} \quad (3.4)$$

¹ Díry a fonony nejsou částice. Jsou to kvazičástice, neboli objekty, které se zavádí pro zjednodušení matematického popisu fyzikálních jevů. Lze jim přiřadit stejné vlastnosti jako běžným částicím, tedy i spin.

Popis spinu elektronu

Velikost spinu elektronu je \hbar , neboli spinové magnetické kvantové číslo elektronu může nabývat hodnot $m_s = \pm \frac{1}{2}$. Hamiltonián popisující spin elektronu získá v maticovém formalizmu následující tvar:

$$\hat{H} = \left[\frac{1}{2m_e} (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 + V \right] \mathbf{1} - \mathbf{M}_s \cdot \mathbf{B} + \hat{H}_{so} \quad (3.5)$$

Člen $-\mathbf{M}_s \cdot \mathbf{B}$ popisuje chování spinu elektronu v magnetickém poli a člen \hat{H}_{so} interakci orbitálního a spinového momentu hybnosti, tzv. spin-orbitální interakci². Konkrétní tvary těchto členů jsou dány vztahy (3.6) a (3.7).

$$\mathbf{M}_s \cdot \mathbf{B} = \frac{e\hbar}{2m_e} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} \quad (3.6)$$

Přičemž $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$ jsou Pauliho matice $\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$, $\sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}$, $\sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$.

$$\hat{H}_{so} = \frac{1}{2m_e^2 c^2} \frac{\partial V}{\partial r} \frac{1}{r} \mathbf{L} \cdot \mathbf{s} \quad (3.7)$$

Ve vztazích (3.5), (3.6) a (3.7) je m_e klidová hmotnost elektronu, c rychlost světla, \mathbf{p} kvaziimpulz, e elementární náboj, \mathbf{A} vektorový potenciál, V potenciál prostředí, ve kterém vyšetřujeme pohyb elektronu, \mathbf{B} vektor magnetického pole a \mathbf{L} vektor orbitálního momentu hybnosti.

Vlnové funkce již nejsou skalární, ale vektorové. Obecně se nazývají spinory a jejich obecný tvar je $\Psi = A(\mathbf{r}) \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + B(\mathbf{r}) \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$, kde $\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ a $\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ jsou báze vektory určující v jakém spinovém stavu se elektron nachází a funkce $A(\mathbf{r})$ a $B(\mathbf{r})$ určují prostorové rozložení vlnové funkce elektronu se spinem $+1/2$ nebo $-1/2$.

3.2 Spin v pevných látkách

Pohyb elektronu s definovaným spinem je v krystalové mříži pevných látek v mnohém odlišný od volného pohybu ve vakuu. Je odlišný i pokud uvažujeme nanokrystaly nebo objemové materiály. V pevných látkách dochází díky poruchám mříže, příměsím a kvantově mechanickým jevům k rozptylu spinu. Některé rozptylové mechanismy se uplatňují pouze v objemových krystalech, jiné i v nanokrystalech, přičemž při různých teplotách jsou jednotlivé rozptylové mechanismy různě dominantní. Navíc v magnetickém poli nebo díky spin-orbitální interakci dochází ke štěpení energetických pásů, čímž se snímá jejich degenerace a čehož lze úspěšně využít při injekci spinově polarizovaných nosičů náboje.

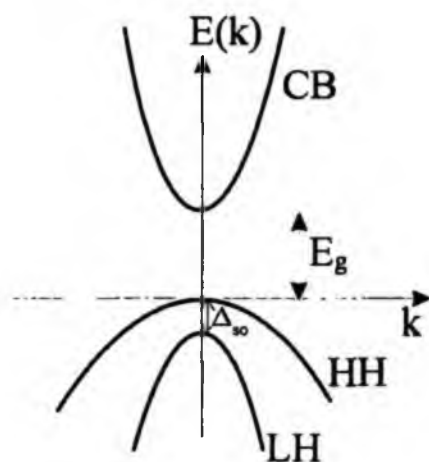
3.2.1 Pásově schéma polovodičů

Budeme-li předpokládat, že periodičita krystalového potenciálu $V(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r} + \mathbf{a})$ je stejná jako periodičita krystalové mříže, kde \mathbf{a} je libovolný vektor krystalové mříže, pak lze vlnovou funkci elektronu v nekonečném periodickém krystalu psát v jedno-elektronové aproximaci ve tvaru Blochových funkcí $\Psi = u_{\mathbf{k}}^j(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}$. Funkce u je periodická s periodou mříže a má význam modulace rovinné vlny elektronu $\sim e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}$. Neboť hamiltonián systému je hermiteovský, výsledné

² Jedná se o relativistickou korekci v druhém řádu teorie poruch.

vlastní hodnoty jsou reálné a v recipročním prostoru platí, že $E(\mathbf{k})=E(\mathbf{k}+2\pi\mathbf{b})$, kde \mathbf{b} je jednotkový vektor reciproké mříže. Neboli energie elektronu se v k -prostoru pohybuje v energetickém pásu. Těchto pásů může být pro každé \mathbf{k} více, proto je rozlišujeme kvantovým číslem j (případně označením vodivostní, valenční pás a další).

Pásová struktura pevných látek je většinou komplikovaný systém energetických hladin. Pro vysvětlení většiny fyzikálních jevů však stačí pracovat pouze v okolí $\mathbf{k}=0$, neboli v okolí tzv. Γ bodu. Zde je možné jednotlivé pásy považovat v první aproximaci za parabolické (viz obrázek 3-1).



Obrázek 3-1: Pásová struktura CdTe v okolí Γ bodu. Vysvětlivky: CB...vodivostní pás, HH...valenční pás těžkých děr, LH...spin-orbitálně odštěpený pás lehkých děr, E_g ...šířka zakázaného pásu, Δ_{so} ...spin-orbitální rozštěpení.

Vlnové funkce jednotlivých pásů lze rozvinout do lineární kombinace atomových orbitalů jednotlivých atomů, ze kterých se daný materiál skládá. U binárních polovodičů zjistíme, že ve většině případů se nejnižší vodivostní pás skládá převážně z nejnižších neobsazených s -orbitalů kationtů a vrchní valenční pásy z nejvyšších obsazených p -orbitalů aniontů [24].

Při uvážení spin-orbitální interakce změníme symetrii řešeného problému. Složky momentu hybnosti již nekomutují s H_{so} , neboli ani orbitální ani spinový moment hybnosti nejsou integrály pohybu. V tomto případě je integrálem pohybu celkový moment hybnosti \mathbf{J} , kde $\mathbf{J}=\mathbf{L}+\mathbf{S}$. Toto však platí pouze za předpokladu sférické symetrie. V krystalu je tato podmínka splněna jen v nejbližším okolí středu Brillouinovy zóny. Při uvážení této aproximace a znalosti orbitalů, ze kterých se skládají jednotlivé pásy, je možné v Γ bodě popsat vodivostní pás, valenční pás těžkých a lehkých děr a spin-orbitálně odštěpený pás vlnovými funkcemi $|J, J_z\rangle$, které mají postupně tvar $|1/2, \pm 1/2\rangle, |3/2, \pm 3/2\rangle, |3/2, \pm 1/2\rangle$ a $|1/2, \pm 1/2\rangle$. Neboli vodivostní pás je vzhledem ke spinu dvakrát degenerovaný a valenční pás je ve středu Brillouinovy zóny při započtení LS-vazby čtyřikrát degenerovaný. Spin-orbitálně odštěpený pás je dvakrát degenerovaný.

3.2.2 Výběrová pravidla

Výběrová pravidla nám určují, mezi jakými stavy může docházet ke kvantovým přechodům elektronu při působení vnějšího pole. Fermiho zlaté pravidlo říká, že pravděpodobnost takového přechodu za jednotku času je dána vztahem (3.8).

$$P_{1 \rightarrow 2} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle 2 | V_{ext} | 1 \rangle \right|^2 \delta(E_2 - E_1 - \hbar\omega_{12}) \quad (3.8)$$

Ve vztahu (3.8) je V_{ext} vnější porucha, která vyvolává daný přechod z hladiny 1 na hladinu 2. Při působení elektromagnetického pole lze v dipólové aproximaci psát, že

$$P_{1 \rightarrow 2} \approx \left| \langle 2 | (X \pm iY) | 1 \rangle \right|^2 = \left| \langle 2 | Y_{1 \pm 1} | 1 \rangle \right|^2 \quad (3.9)$$

kde $X \pm iY$ je reprezentace helicity působícího světla vyjádřená v kartézských souřadnicích. Ve sférických souřadnicích přejdou tyto funkce na sférické harmoniky Y_l^{+1} , Y_l^{-1} . Obecně se při dipólových optických přechodech zachovává průmět celkového momentu hybnosti J_z soustavy elektron-foton. Levotočivě kruhově polarizovaný foton (σ^+) má průmět úhlového momentu hybnosti do směru vlnového vektoru $+\hbar$, pravotočivě kruhově polarizovaný foton (σ^-) $-\hbar$. Odpovídající kvantová čísla pravotočivě (levotočivě) kruhově polarizovaného fotonu tedy jsou $J_z^+ = +1$ ($J_z^- = -1$).

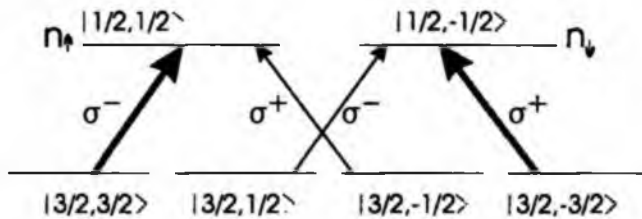
Aplikací Fermiho zlatého pravidla na optické přechody mezi jednotlivými pásy v polovodiči zjistíme, že při osvětlení levotočivě kruhově polarizovaným světlem jsou dovolené přechody:

$$\begin{aligned} |3/2, -1/2\rangle &\rightarrow |1/2, 1/2\rangle && \text{přechody z pásu lehkých děr} \\ |3/2, -3/2\rangle &\rightarrow |1/2, -1/2\rangle && \text{přechody z pásu těžkých děr} \end{aligned} \quad (3.10)$$

a při osvětlení pravotočivě kruhově polarizovaným světlem jsou dovolené přechody:

$$\begin{aligned} |3/2, 1/2\rangle &\rightarrow |1/2, -1/2\rangle && \text{přechody z pásu lehkých děr} \\ |3/2, 3/2\rangle &\rightarrow |1/2, 1/2\rangle && \text{přechody z pásu těžkých děr} \end{aligned} \quad (3.11)$$

Navíc z poměru příslušných maticových elementů plyne, že přechody při působení kruhově polarizovaného světla jsou z pásu těžkých děr třikrát pravděpodobnější než z pásu lehkých děr. To má za následek, že při působení kruhově polarizovaného světla se vytvoří spinová polarizace nosičů náboje [25]. Schematicky jsou tyto přechody znázorněny v obrázku 3-2.



Obrázek 3-2: Optické přechody kruhově polarizovaným světlem v CdTe mezi vrcholem valenčního pásu a dnem vodivostního pásu.

3.2.3 Spinová polarizace nosičů náboje

Spinová polarizace nosičů náboje se definuje vztahem (3.12), [25],

$$P_n = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_-} \quad (3.12)$$

kde n_+ , n_- je koncentrace elektronů se spinem nahoru resp. dolů. Určení směru spinu je otázkou konvence. Zde bereme v úvahu šíření světla dopadajícího na vzorek, tedy elektrony se spinem paralelním s vlnovým vektorem dopadajícího světla mají spin nahoru a obráceně. Polarizace P_n se často uvádí v procentech. Ze vztahu (3.12) je zřejmé, že pro nepolarizované elektrony je polarizace 0 % a maximální polarizace může být ± 100 %. Při osvětlení vzorku s kubickou strukturou (CdTe, GaAs, ...) kruhově polarizovaným světlem dosáhneme spinové polarizace 50 %.

2.4 Injekce spinově polarizovaných nosičů náboje

Způsoby injekce spinově polarizovaných nosičů náboje se liší dle materiálu, s jakým pracujeme. K této injekci lze využít buď metody elektrické nebo optické. Zpočátku panovala domněnka, že přiložením feromagnetického kovu přes ohmický kontakt na polovodič bude možné realizovat příslušnou elektrickou injekci spinově polarizovaných nosičů náboje. Tato metoda však nebyla úspěšná kvůli rozdílným vodivostem feromagnetických kovů a polovodičů.

Tento problém lze obejít dvěma způsoby. Prvním z nich je užití jiného než ohmického kontaktu (např. Schottkyho kontakt, tunelovací bariéra). Druhým řešením je užití místo feromagnetického kovu jiný materiál s vodivostí srovnatelnou s vodivostí polovodiče. Takovým materiálem jsou tzv. magnetické polovodiče (GaMnAs, CdMnTe). I přesto se nedoslo nepodařilo injektovat spinově polarizované nosiče do polovodiče s účinností vyšší než 2 %.

Z tohoto důvodu mají v dnešní době významné postavení metody optické injekce. V těchto metodách využíváme výběrových pravidel, dle kterých excitací materiálu kruhově polarizovaným světlem dochází k vytvoření spinové nerovnováhy. Takto lze vytvořit spinovou polarizaci až v řádu desítek procent.

2.5 Doby spinové relaxace a koherence [25]

Relaxace a rozfázování spinu velkého množství spinově polarizovaných nosičů se nejčastěji definují pomocí Blochových-Torreyových rovnic (3.13), které popisují dynamiku magnetizace \mathbf{M} v přiloženém vnějším magnetickém poli $\mathbf{B}(t)$. Magnetické pole má konstantní podélnou složku B_0 (dle konvence volíme ve směru osy z) a v rovině x,y oscilující příčnou složku \mathbf{B}_1 .

$$\begin{aligned}\frac{\partial M_x}{\partial t} &= \gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{B})_x - \frac{M_x}{T_2} + D\Delta M_x \\ \frac{\partial M_y}{\partial t} &= \gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{B})_y - \frac{M_y}{T_2} + D\Delta M_y \\ \frac{\partial M_z}{\partial t} &= \gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{B})_z - \frac{M_z - M_z^0}{T_1} + D\Delta M_z\end{aligned}\quad (3.13)$$

Výsledná magnetizace souboru N spinově polarizovaných nosičů náboje s gyromagnetickým poměrem γ je dána vztahem (3.14).

$$\mathbf{M} = \sum_{i=1}^N \gamma_i \mathbf{S}_i \quad (3.14)$$

Pro volné elektrony se rovnicemi (3.13) zavádí doba relaxace spinu T_1 (tzv. podélná relaxační doba) a doba rozfázování spinu T_2 (tzv. příčná doba nebo doba dekoherence). Veličina D je difúzní koeficient spinově polarizovaných částic. Výše uvedené rovnice (3.13) jsou rovnice fenomenologické, které kvantitativně velmi dobře popisují dynamiku spinu elektronů např. v experimentech s optickou orientací spinů.

Doba T_1 je doba, za kterou dosáhne podélná magnetizace teplotní rovnováhy s mříží. V těchto procesech musí systém vytvářející spinovou polarizaci odevzdat energii krystalové mříži. Doba T_2 je klasický čas, který trvá určitému množství elektronů s příčným spinem, než původně vykonávali precesi kolem podélného magnetického pole ve fázi, než tuto fázi opouštějí vlivem prostorových a časových fluktuací frekvence precese.

Zcela zásadním poznatkem pro srovnání teoretických modelů s výsledky experimentů je poznatek, že v izotropních krystalech s kubickou symetrií (např. CdTe) platí za podmínky

$\gamma B \ll 1/\tau_c$ rovnost $T_1=T_2$, kde τ_c je tzv. korelační nebo interakční čas: $1/\tau_c$ je míra změny efektivního rozfázovacího magnetického pole. Ztráty fáze se projevují během časového intervalu τ_c . Doba τ_c je v elektronových systémech dána orbitální dobou koherence τ_p nebo dobou interakce elektronů s fonony a dírami. Tyto časy jsou typicky menší než pikosekunda, tudíž rovnost $T_1=T_2$ je splněna pro magnetická pole do několika tesla. Jak již bylo řečeno, rovnost těchto dvou časů je výhodná při srovnání experimentu s teorií. Experimentálně se většinou lépe měří hodnota T_2 , kdežto teoreticky se lépe počítá T_1 . V mnoha případech se proto používá pro relaxaci i rozfázování spinu jednotné značení τ_s a nazývá se buď doba relaxace nebo doba rozfázování spinu. To platí v případě, že nám nezáleží na konkrétní experimentální situaci nebo pokud pracujeme ve slabých magnetických polích.

Doposud jsme se zabývali dobou spinové koherence velkého množství entit, které přispívají k celkové magnetizaci. Vedle doby τ_s se zavádí navíc doba τ_{sc} , což je doba, po kterou má jeden spin definovaný směr. Vzájemné velikosti dob τ_s , τ_{sc} závisí na mnoha faktorech, často ale platí $\tau_{sc} < \tau_s$. V dnešní době však přesný vztah mezi těmito dobami není znám. Doba τ_{sc} je důležitá v aplikacích spinu v kvantovém počítání, naopak doba τ_s je důležitá pro spintroniku.

3.2.6 Relaxační mechanismy spinové koherence [26]

Relaxační doba spinu τ_s v polovodičích závisí na mnoha fyzikálních jevech. V následujícím odstavci popíšu čtyři základní rozptylové mechanismy spinu. Jednotlivé rozptylové mechanismy se mohou ve svém vlivu na relaxaci spinu prolínat, navíc jsou teplotně závislé, tudíž při různých teplotách má každý z těchto čtyř mechanismů různý vliv na dobu τ_s .

D'yakonův-Perelův mechanismus (DP)

Tento mechanismus se uplatňuje pouze v polovodičích bez středu symetrie. Je to většinou nejdůležitější mechanismus spinové relaxace v polovodičích se „středně velkým“ zakázaným pásem při vyšších teplotách (např. GaAs). Vlivem absence středu symetrie dochází mimo $k=0$ k rozštěpení spinově degenerovaných hladin. Rozštěpení vodivostního pásu lze popsat pomocí efektivního magnetického pole B , jehož velikost a směr silně závisí na velikosti a směru vlnového vektoru k . Toto vnitřní magnetické pole, vyvolané spin-orbitální interakcí, je velice silné (v GaAs je 100 meV od minima vodivostního pásu $B \approx 1000 \text{ T}$) a způsobuje, že spiny se kolem něj otáčejí s Larmorovou frekvencí $\Omega(k) = (e/m_e)B(k)$. Silná závislost velikosti i směru B na k má za následek, že smysl i rychlost otáčení se změní pokaždé, když vlivem rozptylu elektronu dojde ke změně jeho k , což se týká i pružných srážek.

Elliott-Yafetův mechanismus (EY)

Elliott-Yafetův mechanismus je důležitý zejména v polovodičích s malou šířkou zakázaného pásu, se silnou spin-orbitální interakcí a také v polovodičích se středem symetrie (Si, Ge, ...). Je to čistě kvantově mechanický rozptylový mechanismus. Je způsoben tím, že vlivem spin-orbitální interakce nejsou vlnové funkce elektronu vlastními funkcemi spinu. Neboli vlnovou funkci elektronu nelze napsat jako součin čistě spinové a čistě prostorové části. Tudíž vlnové funkce spojené s určitým spinovým stavem v sobě obsahují částečně stavy s opačným spinem. Odtud tedy plyne, že vždy existuje jistá pravděpodobnost, že vlivem i spinově nezávislého rozptylu (např. na fononech nebo příměsích) může dojít ke změně spinu.

Bir-Aronov-Pikusův mechanismus (BAP)

Tento rozptylový proces je důležitý v silně p-dopovaných polovodičích za nízkých teplot, kdy elektron-děrová interakce má za následek vznik fluktuujícího lokálního magnetického pole, které následně otáčí spin elektronů.

Hyperjemná interakce s jádry:

Hyperjemná interakce mezi spinem elektronů a spinem atomových jader je důležitá zejména pro lokalizované elektrony. Tato lokalizace může být důsledkem jejich prostorového omezení v nanostrukturách nebo vazby na donory.

3.2.7 Měření spinových vlastností elektronů a děr

Mezi základní parametry popisující spinové vlastnosti elektronů a děr patří výše zmíněná spinová polarizace a doba relaxace spinu. V polovodičích se tyto veličiny nejčastěji studují metodami laserové spektroskopie. Metody laserové spektroskopie lze rozdělit do dvou skupin. Do jedné skupiny patří časově integrované metody (např. využití tzv. Hanleova efektu), do druhé skupiny patří časově rozlišené metody ultrarychlé laserové spektroskopie. Těmito metodami jsou především časově rozlišená fotoluminiscence, polarizačně závislá saturace absorpce nebo se metodou Faradayovy příp. Kerrovy rotace měří přímo magnetizace způsobená orientovanými spiny. Další, velmi silnou metodou pro studium dynamiky spinové polarizovaných nosičů náboje je metoda laserem indukované mřížky a metoda autodifrakce. Metodě autodifrakce je věnována kapitola 5.2., měření polarizačně závislé saturace absorpce je věnována kapitola 5.3.

V kovech se pro měření spinové polarizace využívají jiné metody. Jednou z nich je např. měření prostorové korelace magnetizace Johnsonovým-Silsbeeem experimentem injekce spinu [25]. Kovy se však v této práci nezabýváme, proto je stěžejní pozornost věnována metodám měření spinové polarizace v polovodičích.

3.3 Využití spinu

Ačkoliv je spin elektronu znám prakticky od počátků kvantové mechaniky, své praktické uplatnění našel až v nedávných letech. Informace se v tomto případě nepřenáší pomocí náboje elektronu (případně napětí), ale spinu (spin nahoru/dolu). První spintronické součástky již našly své uplatnění v podobě pevných disků moderních počítačů, jejichž vysoká kapacita je způsobena zvýšením hustoty zápisu dat, které bylo umožněno novými čtecími hlavami založenými na spintronickém jevu, tzv. gigantické magnetorezistivitě. Dále jsou to nové typy počítačových pamětí MRAM (magnetic random access memory). Ty mají oproti běžně užívaným pamětem RAM tu výhodu, že v sobě uchovávají uložené informace i po odpojení napájení. Nic méně zde se jedná o aplikaci spinu v kovech.

V dnešní době se vkládají velké naděje do polovodičové spintroniky. Důvody jsou zřejmé. V polovodičích je řádově mnohem méně nosičů náboje než v kovech, tudíž lze snadněji ovlivňovat jejich chování vnějšími poli a navíc polovodiče lze snadno dopovat a tím měnit jejich základní fyzikální parametry.

Mezi navržené součástky založené na manipulaci se spinem patří spinový, polem ovládaný tranzistor (SFET). Oproti běžnému, polem řízenému tranzistoru (FET), by měl řadu výhod. Jednak změnu logického stavu tranzistoru lze dosáhnout s podstatně menší spotřebou energie, jednak by měl pracovat mnohem rychleji a navíc je principiálně možné magnetickým polem průběžně měnit logickou funkci tranzistoru, což je s běžným tranzistorem typu FET zcela nemožné.

Magnetický bipolární tranzistor, spinový tranzistor využívající horké elektrony, spinové diody a lasery vyzařující kruhově polarizované světlo, spinové filtry a v neposlední řadě realizace kvantového počítače na bázi spinů v polovodičích, to je výčet dalších aplikací spinu, které čekají na svou realizaci.

K tomu je ale zapotřebí vyřešit dva zásadní problémy. Elektrickou injekci spinu do polovodičových materiálů tak, aby bylo možné integrovat spintronicke součástky s elektronickými a zároveň tím využít již zaběhnuté technologie jejich výroby. A za další je nutné zabezpečit dostatečně dlouhou dobu koherence spinu. Zde se právě uplatňují optické metody ultrarychlé spektroskopie. Tyto metody se již mnohokrát osvědčily jako ideální nástroj ke studiu spinové koherence a právě jednu z těchto metod budeme používat v této práci pro studium dynamiky spinově polarizovaných nosičů náboje v CdTe.

4 CdTe

CdTe je binární sloučenina patřící do skupiny II-VI polovodičů. V dnešní době je však většina pozornosti věnována polovodičům ze skupiny III-V, z hlediska spinu pak především sloučenině GaAs. V CdTe se nejčastěji studují nanokrystaly, kvantové jámy a CdMnTe. Doposud bylo však věnováno velmi málo studií objemovému CdTe. Co se týče studia spinových vlastností v objemovém CdTe, pak existuje pouze pár prací zabývajících se touto problematikou [27,28]. Další výhodou je, že CdTe má stejnou krystalovou strukturu jako velmi dobře prozkoumaný materiál GaAs. To umožňuje určit, které vlastnosti jsou dány právě krystalovou strukturou a které odlišnými materiálovými parametry.

4.1 Zakázaný pás

CdTe je polovodič s přímým zakázaným pásem, jehož šířka je při teplotě kapalného hélia $1,606 \text{ eV}$ [15]. Při pokojové teplotě (300 K) je šířka zakázaného pásu vysoce čistého CdTe rovna $1,513 \text{ eV}$. Závislost šířky zakázaného pásu na teplotě lze vyjádřit Varshniho formulí (4.1) s parametry $a=-3,72 \times 10^{-4} \text{ eV/K}$, $b=110,0 \text{ K}$, $E_0=1,6077 \text{ eV}$ [29], která platí v rozsahu teplot $T=(0-500) \text{ K}$

$$E_g = E_0 + \frac{aT^2}{b+T} \quad (4.1)$$

Pozn.: Při určování šířky zakázaného pásu při pokojové teplotě je potřeba uvážit projev Urbachovy hrany. Dále při měření E_g z fotoluminiscenčního spektra je nutné počítat s tím, že maximum fotoluminiscence se nachází na $E_g+kT/2$ [15] a stejně tak je nutné zahrnout vliv rekombinace excitonů, a to i za pokojové teploty v objemovém CdTe [30] (vazebná energie excitonu v nedopovaném CdTe je 10 meV [15]).

4.2 Dopování CdTe na n- a p- typ

Velkou výhodou CdTe je, že lze dopováním měnit jeho typ vodivosti. Technicky jednodušší je vyrobit p-tytové CdTe [12,13,14,15]. Toho je možné dosáhnout obohacením tellurem (od 51% do 60% koncentrace telluru), což je tzv. Te-rich CdTe. Navíc existují prediktory [13], které určují, zda se určitý dopant bude v II-VI polovodičích chovat jako akceptor. Mezi takto určené akceptory v CdTe patří dusík, fosfor, arsen a antimon. Dopování vanadem vede na vytvoření hluboké hladiny ve vzdálenosti $0,75 \text{ eV}$ od vodivostního pásu [31]. Podobně germanium, které vytváří hlubokou hladinu ve vzdálenosti $0,73 \text{ eV}$ od valenčního pásu, čímž se stabilizuje Fermiho mez [31]. Germanium má navíc tu vlastnost, že při vysokých koncentracích mění typ vodivosti CdTe na n-tyt [32].

Poněkud složitější situace nastává v případě, kdy chceme CdTe dopovat na n-tyt [14,16,17]. Jednou z možností je přímo výroba n-tytového CdTe metodou MBE [15]. Jedním z donorů pro CdTe je indium [16], které lze do CdTe nadopovat například metodou laserové implantace. Dopování laserem však může způsobit zvýšení difúze nečistot a zamrznutí spousty bodových nerovnovážných defektů [16]. Dalším donorem je zinek v kompozitu $\text{Cd}_{0,96}\text{Zn}_{0,04}\text{Te}$, kde koncentrace elektronů dosahuje hodnot $n=8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, která je blízko rozhraní kov-polovodič [17]. Přechod kov-polovodič je pro CdTe při koncentraci elektronů $n_{MIT}=10^{17} \text{ cm}^{-3}$, kde se mimo jiné očekávají nejdelsí relaxační doby spinů [33]. N-tytové jsou také kompozity $\text{Cd}_{0,96}\text{Zn}_{0,04}\text{Te}:\text{V}:\text{As}$ a $\text{Cd}_{0,85}\text{Zn}_{0,15}\text{Te}:\text{V},\text{Cl}$, ale už $\text{Cd}_{0,96}\text{Zn}_{0,04}\text{Te}:\text{V}:\text{Cl}$ je opět p-tyt [34].

4.3 Doby života nosičů náboje

Doby života nosičů náboje lze měřit několika způsoby. Mezi nejpoužívanější patří měření fotoproudu [18,35] nebo metody optické, jako jsou excitace a sondování [36], časově rozlišená fotoluminiscence [37], Kerrova [27] nebo Faradayova rotace a v neposlední řadě metoda čtyř-vlnového směšování [14,20,31,34,38,39,40,41].

Studiem fotoproudu ve vysoce odporovém CdTe dopovaném indiem byly zjištěny dvě relaxační konstanty na škále 10 ns a 100 ns [18]. V modelu tří hladin v zakázaném pásu (mělká a hluboká rekombinační hladina a vliv hlubokých pastí) bylo určeno, že rychlejší složka náleží rekombinaci podpořené rekombinačními hladinami v zakázaném pásu a pomalá složka přísluší záchytu elektronů na hlubokých pastech [35].

Metodou čtyř-vlnového směšování bylo měřeno při pokojové teplotě různě dopované objemové CdTe, jako je CdTe:V(10^{19} cm^{-3} vanadu) s dobou života volných nosičů náboje $1,7\text{ ns}$ [20,38], CdTe:V $\tau_r=1,2\text{--}4\text{ ns}$ [31,41], p-typové a n-typové CdTe (konkrétní dopant neuveden) s dobami života $\tau_r=(12,5\pm 9,0)\text{ ns}$ [14], CdTe:Ge $\tau_r=2\text{ ns}$ [31], CdTe:V:Cl $\tau_r=6\text{--}9\text{ ns}$ [41], CdTe:V:As $\tau_r=5\text{--}6\text{ ns}$ [41], p-typové CdTe (konkrétní dopant neuveden) $\tau_r=2,6\text{ ns}$ [42], p-Cd_{0,9}Zn_{0,1}Te s dobou života volných elektronů $\tau_r=1,8\text{ ns}$ [42] nebo například CdTe dopované germánium s $\tau_r=1,7\text{ ns}$ [43].

Dále je pro studium CdTe často používána metoda excitace a sondování. Touto experimentální technikou byla zjištěna doba života volných nosičů náboje v CdTe:Cl $\tau_r=2,5\text{ ns}$ a v Cd_{0,96}Zn_{0,04}Te $\tau_r=0,55\text{ ns}$ [36]. Časově rozlišenou fotoluminiscencí bylo studováno CdTe dopované indiem (v koncentraci $1\times 10^{16}\text{ cm}^{-3}$), kde byly určovány doby života excitonů lokalizovaných na neutrálních donorech, neutrálních akceptorech a různých poruchách mříže, přičemž jednotlivé doby života excitonů jsou postupně 400 ps , 1460 ps a 2560 ps [37].

Na dobu života volných nosičů náboje v objemovém vzorku má vliv také povrchová rekombinace. Čím je vzorek tenčí, tím větší je vliv povrchu, neboť volné nosiče náboje se mohou dostat difúzí přes celou šířku vzorku [40]. Mizeikisa a kol. [40] uvádějí, že pro 700 nm tlustý vzorek CdTe již nelze rozlišit povrchovou a objemovou rekombinaci. Doba života nosičů náboje v takto tlustém vzorku byla 1130 ps .

4.4 Doba spinové koherence

Době spinové koherence v objemovém CdTe doposud příliš pozornosti věnováno nebylo. Většinou se studium spinu zaměřuje na kvantově omezené struktury a magnetické polovodiče. Měření doby spinové koherence v objemovém CdTe zatím publikovali pouze Kimel a kol. [27] a Nahálková a kol. [28]. Dle Kimela je doba spinové koherence $2,5\text{ ps}$. Řádově delší relaxace v rozmezí $36\text{--}52\text{ ps}$ byla zjištěna v [28], kde byly studovány tři vzorky o různých tloušťkách a s různou povrchovou úpravou. Rozdíl je pravděpodobně v neuvážení doby relaxace a rekombinace elektronů v práci [27] a patrně i v rozdílných vlastnostech zkoumaných vzorků [28].

Pro srovnání uvádím typické hodnoty spinové koherence v objemovém GaAs, které jsou v rozmezí $65\text{--}77\text{ ps}$ [28].

Častěji se však studují vlastnosti kvantových jam, jako je např. CdMnTe/CdTe/CdMgTe, kde byla změřena doba překlopení spinu 7 ps a doba relaxace fáze 2 ps [39]. Jednalo se o měření spinu excitonů, jejichž doba rekombinace byla určena na 150 ps . Měření bylo provedeno metodou čtyř-vlnového směšování. V kvantové jámě na bázi CdTe/Cd_{0,88}Mn_{0,12}Te byla změřena doba relaxace spinu elektronu 10 ps a doba relaxace spinu děr v rozmezí $100\text{--}200\text{ fs}$ [44]. Měřeno bylo metodou časově rozlišené laserové spektroskopie

modulace magnetizace (TIMMS)³ za pokojové teploty. Stejnou experimentální metodou byla studována i jáma typu CdTe/CdMnTe, kde byla za pokojové teploty určena doba dosažení spinové rovnováhy s mříží na 10-15 ps [45].

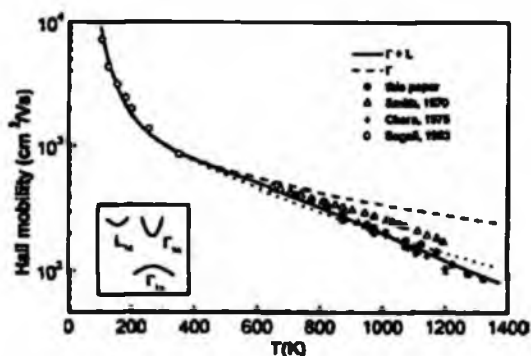
4.5 Difúzní koeficienty

Měření difúzních koeficientů lze provádět buď metodami čistě elektrickými, jako je měření Hallovy pohyblivosti [14,46], metodami elektro-optickými⁴ [1] nebo opticky pomocí čtyř-vlnového směřování [14,20,31,34,36,40,41].

Měření Hallovy pohyblivosti byly zjištěny pohyblivosti v n-typovém CdTe při pokojové teplotě pro elektrony $\mu_e=1040 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ a pro díry $\mu_h=90,1 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ [14]. Na totéž vzorku byl změřen metodou laserem indukované mřížky ambipolární difúzní koeficient $D_a=(3,1\pm 1,5) \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$, který byl stejný jak u n-typového tak p-typového CdTe. Tato hodnota je v dobrém souhlasu s teoretickými předpověďmi.

Hallova pohyblivost byla měřena při různých teplotách. V oboru (450-1050) K byla změřena v [46]. Výsledky jsou uvedeny v obrázku 4-1.

Měření doby průletu volných nosičů náboje⁴ byla měřena pohyblivost v $\text{Cd}_{0,8}\text{Zn}_{0,2}\text{Te}$ v oboru teplot 200-320 K, přičemž pohyblivost elektronů se v tomto oboru teplot chovala jako $\mu_e \sim T^{-1,1}$ a pohyblivost děr jako $\mu_h \sim T^{-2,0}$ [1]. Při pokojové teplotě byla zjištěna pohyblivost elektronů $\mu_e=1350 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ a pohyblivost děr $\mu_h=120 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$.



Obrázek 4-1: Experimentální a teoretické hodnoty Hallovy pohyblivosti v CdTe dle různých autorů a teoretických studií. Plná kolečka dle J.Franc a kol. [46].

Následující hodnoty pohyblivosti byly určeny metodou laserem indukované přechodné mřížky. Takto bylo měřeno například vanadem dopované CdTe, kde byla změřena ambipolární pohyblivost $\mu_a=135-140 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ($D_a=3,4 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$), děrová pohyblivost $\mu_h=135-80-90 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ a z těchto hodnot byla spočtena pohyblivost elektronů $\mu_e=520 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ [20]. V chlorem dopovaném CdTe byl určen ambipolární difúzní koeficient $D_a=3 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ a stejná hodnota byla určena i v $\text{Cd}_{0,96}\text{Zn}_{0,04}\text{Te}$ [36]. V tenké vrstvě CdTe (768 nm; CdTe/ZnTe/GaAs) byl určen monopolární difúzní koeficient ($n \ll p$) $D_h=(29,5\pm 4,8) \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ [40]. Ve vanadem dopovaném CdTe je $\mu_e=(980\pm 50) \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ a ambipolární koeficient v CdTe:V,As je $D_a=11,6 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ [31].

Studium závislosti difúzního koeficientu na excitační intenzitě provedli Jarasiunas a kol. [41] a Sudzius a kol. [34]. První z prací se zabývá experimentálními aspekty, druhá

³ TIMMS...time-resolved magnetization modulation spectroscopy.

⁴ Laserovým pulzem se vygenerují volné nosiče náboje, které se v přiloženém elektrickém poli pohybují k opačně pólovým elektrodám na vzorku a ze závislosti doby pohybu nosičů k elektrodám na převrácené hodnotě přiloženého napětí se určí pohyblivosti elektronů a děr. Z pohyblivosti lze přes Einsteinův vztah určit difúzní konstantu.

teoretickou interpretací. Měřeno bylo při intenzitách excitace laserem indukované mřížky 2,4 1,2 a 0,6 mJ/cm². Pro CdTe:Zn:V:As byly určeny v závislosti na intenzitě excitace postupně hodnoty difúzních koeficientů 1,7 6,2 a 8,1 cm²/s, pro Cd_{0,96}Zn_{0,04}Te:V:Cl 3,9 7,7 a 6,6 cm²/s, Cd_{0,96}Zn_{0,04}Te:V:As 2,0 1,9 a 1,5 cm²/s, Cd_{0,85}Zn_{0,15}Te:V:Cl 1,1 0,4 a 0,2 cm²/s, CdTe:V:Cl 3,1 1,6 a 0,4 cm²/s, v CdTe:V:As se difúzní koeficienty pohybovaly v závislosti na excitační intenzitě v rozmezí 8-12 cm²/s a ve vanadem dopovaném CdTe ke změnám difúzního koeficientu téměř nedocházelo, jeho hodnota byla stále 1,3 cm²/s [34,41]. Ambipolární difúzní koeficient v CdTe:V byl určen na $D_a=4,1 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$. Mizeikisa a kol. [40] uvádějí typickou hodnotu ambipolárního koeficientu v objemovém nedopovaném CdTe 3,5 cm²/s.

4.6 Teplotní charakteristiky

Při vyšetřování vlastností pevných látek metodami laserové spektroskopie vždy předpokládáme, že použitá intenzita excitačních pulzů neponičí studovaný vzorek. Neboli že během měření nedochází k destrukci materiálu, či k jeho tavení. V námi prováděných experimentech se zcela jistě nesetkáme s ablací materiálu, ale k částečnému tavení v povrchových oblastech byl docházet mohlo. Tímto problémem v CdTe se již zabývalo mnoho autorů, a to jak po teoretické [47], tak po experimentální stránce [19,47,48].

Při ostřelování vzorků CdTe excimerovým laserem na vlnové délce 248 nm s jednotlivými pulzy o délce 20 ns byla zjištěna mez tavení 2,4-2,5 MW/cm² (tj. cca 0,048 J/cm²) a intenzita ablace 7,3 MW/cm² [47]. Použitím rubínového laseru s délkou pulzů 80 ns byla určena mez tavení povrchu CdTe na 0,12 J/cm² [48]. Tyto hodnoty se liší zhruba 2,5-krát, což je mimo jiné projev náročnosti určení meze tavení. Náročnost spočívá především v tom, že polovodiče typu II-VI mají v kapalně fázi stále vlastnosti polovodičů, kdežto polovodiče typu III-V mají v kapalně fázi vlastnosti kovů, tudíž změna vlastností je při tavení III-V polovodičů výraznější.

Další charakteristické vlastnosti CdTe související s určením meze tavení jsou uvedeny v tabulce č.1.

Tabulka č.1: Teplotní charakteristiky CdTe

VLASTNOST[JEDNOTKY]	V PEVNÉ FÁZI	V KAPALNÉ FÁZI	ZDROJ
Bod tání [K]		1365	[47]
Hustota [g/cm ³]	5,85	6,4	
Specifické teplo c_p [J / gK]	$0,205 + 3,6 \times 10^{-5} T$	0,255	
Latentní teplo L [J / g]		209	
Tepelná vodivost K [W / cm K]	15,07/T	0,011	
Odrazivost R	0,43	0,45	
rychlost chlazení	až 10^{11} K/s		[19]

5 Metody časově rozlišené laserové spektroskopie

Vzájemnou interakci pevné látky s optickým polem lze názorně studovat rozбором metody laserem indukované mřížky. Tato experimentální metoda patří mezi tzv. metody čtyř-vlnového směřování, stejně tak jako námi používané techniky excitace a sondování a autodifrakce.

5.1 Laserem indukovaná mřížka [49]

Princip metody laserem indukované mřížky je relativně jednoduchý. To ale vždy neplatí o experimentální realizaci. Jedná se o interferenci dvou krátkých pulzů ve studovaném nelineárním materiálu ($\chi^{(3)} \neq 0$). Interferenční světelné pole indukuje ve vzorku změny materiálových parametrů (indexu lomu, absorpce). Tyto změny jsou modulovány podobně jako interferenční světelné pole, neboli vytvářejí mřížku (indexovou nebo absorpční). Tuto mřížku lze studovat třetím pulzem, který na této mřížce difraktuje. Z časově rozlišeného měření difrakční účinnosti lze určit dynamické vlastnosti materiálu, difúzní koeficienty, hodnoty povrchové rekombinace a mnohé další.

5.1.1 Laserové svazky a pulzy

Ve většině případů pracujeme se základním gaussovským modem TEM_{00} . Pro jednoduchost budeme uvažovat rovinné vlnoplochy. Tento požadavek je splněn za předpokladu $w \gg \lambda$, kde w je pološířka svazku a λ je vlnová délka použitého světla. Světelnou elektromagnetickou vlnu lze v tomto případě popsat vztahem (5.1).

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{\mathbf{A}}{2} e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} + c.c. \quad (5.1)$$

$$\text{pro } TEM_{00} \quad \mathbf{A} = \mathbf{A}(\rho) = A_0 e^{-\left(\frac{\rho}{w}\right)^2}$$

Intenzita světelného pole je v soustavě SI dána známým vztahem (5.2), ve kterém vystupují

$$I(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c n |\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)|^2, \quad [I] = W / cm^2 \quad (5.2)$$

postupně veličiny permitivita vakua ε_0 , rychlost světla c , index lomu prostředí n a amplituda elektrického pole $A(\mathbf{r}, t)$. Je potřeba si uvědomit, že se jedná o intenzitu středovanou v časech mnohem delších než je perioda elektromagnetického pole a kratších než je odezvovalá doba použitého detektoru.

Krátké pulzy mají často gaussovský průběh, který lze do tvaru pole E jednoduše zahrnout časovou obálkou amplitudy elektrického pole (5.1). Vektor elektrického pole popisujícího krátké TEM_{00} pulzy osově symetrické podél osy šíření mají tedy následující tvar (5.3).

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{\mathbf{A}_0}{2} e^{-\left(\frac{\rho}{w}\right)^2} e^{-\left(\frac{t-t_0}{2t_p}\right)^2} e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \quad (5.3)$$

Ve vztahu (5.3) je t_0 čas, kdy je v daném místě \mathbf{r} maximální amplituda A a t_p je doba trvání pulzu. Při detekci pulzů jsou důležité veličiny expozice E_p (5.4) a celkové energie W v pulzu (5.5), kterými lze popsat odezvu detektoru.

$$E_p = \int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt \quad (5.4)$$

$$W = 2\pi \int_0^{\infty} E_p(\rho) \rho d\rho \quad (5.5)$$

5.1.2 Dvousvazková interference

Superpozice dvou rovinných vln

Schematické zobrazení dvousvazkové interference spolu s uvažovaným souřadným systémem viz obrázek 5-1.



Obrázek 5-1: Dvousvazková interference a příslušné zavedení souřadného systému.

Veškeré veličiny (vlnové vektory, vlnová délka, úhel θ) jsou měřeny uvnitř vzorku. Interferenci svazků určených k_A , k_B získáme mřížku s vlnovým vektorem $q = k_A - k_B$. Z geometrie zobrazené na obrázku 5-1 plyne pro periodu mřížky vztah (5.6).

$$\Lambda = \frac{\lambda_p}{2 \sin(\theta/2)} \quad (5.6)$$

Ze vztahu (5.6) plyne, že periodu mřížky by mělo být možné měnit v intervalu $(\lambda_p/2, \infty)$. Ve skutečnosti je však perioda mřížky Λ shora omezena příčným rozměrem svazku⁵. Pole v jednotlivých ramenech lze vyjádřit dle (5.7)

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_A &= \frac{\mathbf{A}_A}{2} e^{i(\mathbf{k}_A \cdot \mathbf{r} - \omega t)} + c.c. \\ \mathbf{E}_B &= \frac{\mathbf{A}_B}{2} e^{i(\mathbf{k}_B \cdot \mathbf{r} - \omega t)} + c.c. \end{aligned} \quad (5.7)$$

přičemž vlnové vektory mají ve zvolené bázi tvar (5.8)

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_A &= z_0 k_z + x_0 k_x \\ \mathbf{k}_B &= z_0 k_z - x_0 k_x \end{aligned} \quad (5.8)$$

a výsledné interferenční pole vyjádříme jako (5.9).

$$\mathbf{E} = \frac{\mathbf{A}}{2} e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{z} - \omega t)} + c.c., \text{ kde } \mathbf{A} = \mathbf{A}_A e^{ik_x x} + \mathbf{A}_B e^{-ik_x x} \quad (5.9)$$

Takovému poli odpovídá rozložení intenzity (5.10), kde ΔI je parametr důležitý pro vytvoření mřížky pokud jsou jak vzorek tak interakční mechanismus izotropické.

$$\begin{aligned} I &= I_A + I_B + 2\Delta I \cos(2k_x x) \\ \Delta I &= \frac{n}{2} \epsilon_0 c \mathbf{A}_A \cdot \mathbf{A}_B^* \end{aligned} \quad (5.10)$$

V případě anizotropního prostředí nebo interakce může být mřížka vytvořena i v případě, kdy jsou amplitudy interferujících elektrických polí jednotlivých svazků na sebe vzájemně kolmé, tj.: $\mathbf{A}_A \perp \mathbf{A}_B$ a $\Delta I = 0$. Pro započtení těchto případů se zavádí interferenční tenzor ΔM (5.11).

⁵ Možností, jak zajistit velkou periodu mřížky je použití homogenního osvětlení vzorku a přiložení masky s mřížkou o požadované periodě.

$$\Delta M_{ij} = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c A_{A,i} A_{B,j}^* \quad (5.11)$$

V takovém případě je veličina ΔI vyjádřena jako absolutní hodnota stopy interferenčního tenzoru.

Skládání krátkých pulzů

Budeme předpokládat velmi častý gaussovský tvar pulzů, který vede na následující vyjádření intenzity jednotlivých pulzů (5.12).

$$I_{A,B}(t) = \hat{I}_{A,B} e^{-\left(\frac{t-t_0}{\tau}\right)^2}, \text{ kde} \quad (5.12)$$

$$\hat{I}_{A,B} = \frac{1}{2} n c \varepsilon_0 |A_{A,B}(\rho)|^2$$

Což vede na tvar interferenčního tenzoru (5.13).

$$\Delta M_{ij} = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 A_{A,i}(\rho) A_{B,j}(\rho) e^{-\left(\frac{r}{2\tau_r}\right)^2} e^{-\left(\frac{t}{\tau_r}\right)^2} \quad (5.13)$$

Skládání svazků s různou polarizací

Dvousvazková interference se nejčastěji studuje v případě, že oba interferující svazky mají kolineární vektory elektrického pole. Pro experimenty laserem indukované mřížky je výhodné používat i jiné polarizace.

1. $\mathbf{A}_A \parallel \mathbf{A}_B \parallel \mathbf{y}_0$, (oba pulzy jsou s-polarizované)

$$\Delta M = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Delta I & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (5.14)$$

2. $\mathbf{A}_A, \mathbf{A}_B \perp \mathbf{y}_0$, (oba pulzy jsou p-polarizované)

$$\Delta M = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 \begin{pmatrix} A_{A,x} A_{B,x}^* & 0 & A_{A,z} A_{B,x}^* \\ 0 & 0 & 0 \\ A_{A,x} A_{B,z}^* & 0 & A_{A,z} A_{B,z}^* \end{pmatrix} \quad (5.15)$$

3. $\mathbf{A}_A \parallel \mathbf{y}_0, \mathbf{A}_B \perp \mathbf{y}_0$, (smíšená polarizace)

$$\Delta M = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ A_{A,x} A_{B,x}^* & 0 & A_{A,x} A_{B,z}^* \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (5.16)$$

4. opačné kruhové polarizace při $|\mathbf{A}_A| = |\mathbf{A}_B|$

$$\Delta M = \frac{1}{4} c \varepsilon_0 |\mathbf{A}_A| \begin{pmatrix} \cos^2 \frac{\theta}{2} & i \cos \frac{\theta}{2} & \frac{1}{2} \sin \theta \\ i \cos \frac{\theta}{2} & -1 & i \sin \frac{\theta}{2} \\ -\frac{1}{2} \sin \theta & -i \sin \frac{\theta}{2} & -\sin^2 \frac{\theta}{2} \end{pmatrix} \quad (5.17)$$

Podmínky rovinného interferenčního pole

Interferenční pole může mít libovolný tvar. Vzhledem k jednoduchosti popisu následné difrakce požadujeme, aby vzniklé interferenční pole bylo rovinné. Požadavek rovinnosti je splněn za tří následujících podmínek:

1. $qw \gg 1$; minimální šířka svazku w musí být mnohem větší než perioda mřížky. Tato podmínka klade omezení na maximální fokusaci svazku za účelem zvýšení intenzity působícího světelného pole.
2. $z_0/d \gg 1$; překryvová délka obou pulzů z_0 ve směru osy z musí být mnohem větší než tloušťka vzorku d , což je omezení na úhel θ mezi směry jednotlivých pulzů.
3. $ad \ll 1$; zeslabení excitačních pulzů ve vzorku musí být zanedbatelné.

Veškeré následující závěry jsou platné za výše uvedených podmínek pro rovinné interferenční pole. Tyto závěry jsou kvalitativně platné i když je jedna nebo více výše uvedených podmínek splněna pouze okrajově.

5.1.3 Materiálová odezva

Mechanismus laserem indukovaných změn vlastností optických materiálů je obvykle popsán dvěma kroky. Nejdříve interagující světlo vytvoří excitaci, která následně vede ke změně optických vlastností. V nejjednodušším případě dojde ke změně absorpce nebo indexu lomu, což vede na amplitudovou nebo fázovou mřížku.

Obecný popis odezvy

Ultrafialové, viditelné a záření z blízké infračervené oblasti nejprve interaguje s elektrony daného materiálu. Záření ze střední a daleké infračervené oblasti interaguje s fonony a nízkoenergetickými excitacemi.

Procesy interakce lze rozdělit na rezonanční (reálné přechody) a nerezonanční (virtuální). V této práci se budu zabývat pouze rezonančními interakcemi.

Obecně lze rozdělit odezvu materiálu po excitaci do několika fází. V první fázi dochází k relaxaci fáze, kde dochází ke ztrátě koherence rozkmitaných dipólů. Tato fáze trvá zhruba prvních $10-100$ fs.

Dále dochází k termalizaci, což je fáze, kdy dojde k takové distribuci nosičů náboje, kterou lze popsat Fermiho-Diracovým rozdělením. Je tedy možné nosičům náboje přiřadit teplotu, která je obvykle v řádu stovek až tisíců kelvinů. Toto rozdělení se vytvoří v časovém horizontu 100 fs. Poté, co je absorbovaná energie lokálně termalizovaná, je výhodné výslednou mřížku popisovat běžnými termodynamickými veličinami, jako jsou teplota, koncentrace apod.. Vzorek jako celek není stále v rovnováze, dokud se jednotlivé veličiny popisující mřížku mění v závislosti na prostorové souřadnici. K dosažení jejich rovnováhy je zapotřebí přenos tepla, hmoty, nosičů náboje a dalších. Tento proces je zajišťován difúzí.

Poté dochází ke snižování teploty popsané Fermiho-Diracovým rozdělením, které je realizováno emisí optických a akustických fononů. Tento proces trvá desítky pikosekund.

V poslední fázi dochází k zářivé a nezářivé rekombinaci elektron-děrových párů a difúzi. Difúze obecně nemění pozici excitované oblasti, pouze rozmývá prostorový profil dané veličiny. Časový rozsah této fáze silně závisí na studovaném materiálu, na přítomnosti akceptorů, donorů a záhytných centrech.

V celém popisu laserem indukované mřížky předpokládáme, že indukovaná změna vlastností materiálu je úměrná působící světelné intenzitě, což lze vyjádřit vztahem (5.18), kde faktor g vyjadřuje vazbu mezi lokální intenzitou interferenčního pole dvou pulzů

$$\Delta X = g(\lambda_p) \Delta I(\lambda_p) \quad (5.18)$$

a změnou ΔX materiálového parametru X (např. index lomu, absorpce, koncentrace, atd.). Obecně vazbový faktor g i intenzita závisí na vlnové délce excitačních pulzů. Pravá strana vztahu (5.18) může být považována za první člen mocninné řady popisující obecný vztah mezi ΔX a ΔI .

V obecném případě různě vzájemně polarizovaných excitačních pulzů, tedy v případě nutnosti popisu interferenčního pole pomocí interferenčního tenzoru, je nutné přistoupit ke komplikovanějšímu vyjádření vazby mezi polem a vlastnostmi materiálu (5.19), případně při uvážení druhého členu Taylorova rozvoje (5.20).

$$\Delta X_{ij} = g_{ijkl} \Delta M_{kl} \quad (5.19)$$

$$\Delta X_{ij} = g_{ijkl}^{(1)} \Delta M_{kl} + g_{ijklmn}^{(2)} \Delta M_{kl} \Delta M_{mn} + \dots \quad (5.20)$$

Z tenzorového vyjádření interakce světla s materiálem (5.19) je zřejmé, že v tomto obecném případě popisu je možná modulace změny materiálových parametrů i za předpokladu nulové modulace intenzity světelného pole, tedy při vzájemně kolmých polarizaci obou excitačních pulzů. Veličina ΔX může být skalár (teplota, koncentrace, index lomu,...), vektor (elektrické pole, tok,...) nebo tenzor (tlak, napětí,...), tudíž dle fyzikálního významu ΔX musíme ve vztahu (5.19) a (5.20) upravit počet indexů (skalár-bez indexů, vektor-jeden index, tenzor 2.řádu-dva indexy, atd.).

Studium světlem indukované mřížky provádíme nejčastěji studiem změn indexu lomu nebo absorpce. Ostatní procesy spojené s excitací se do změn indexu lomu a absorpce zahrnou opět vazbovými funkcemi mezi jednotlivými veličinami (5.21). Ve vztahu (5.21) není uvážení obecný tenzorový charakter ΔX , neboli jedná se o konkrétní vyjádření provázání dvou skalárních veličin.

$$\begin{aligned} \Delta n &= \frac{\partial n}{\partial X} \Delta X \\ \Delta K &= \frac{\partial K}{\partial X} \Delta X \end{aligned} \quad (5.21)$$

Příspěvky různých procesů přispívajících k vytvoření mřížky lze rozlišit jejich intenzitou, časovou závislostí nebo polarizací.

5.1.4 Mřížky v polovodičích

Populační mřížka

V polovodičích s elektrony a dírami o vysokých pohyblivostech je populační mřížka tvořena mřížkou z volných nosičů náboje. Pohybující se elektrony a díry vytvářejí díky různým pohyblivostem prostorový náboj. Prostorový náboj může vznikat též následným záchytem nosičů náboje na pastech, kde může setrvávat v širokém časovém rozmezí od několika nanosekund až po řád milisekund.

Změna komplexního indexu lomu je svázána s intenzitou světla vztahem (5.22), ve kterém nelineární index lomu \bar{n}_2 má úzkou souvislost s komplexní susceptibilitou třetího řádu

$\chi^{(3)}$.

$$\Delta \bar{n} = \bar{n}_2 I \quad (5.22)$$

V případě rezonanční interakce a kontinuálního osvětlení vybudíme hustotu nosičů náboje N (5.23), kde ξ je kvantová účinnost, α absorpční koeficient, τ doba rekombinace elektron-děrových párů a I intenzita dopadajícího světla na frekvenci ω .

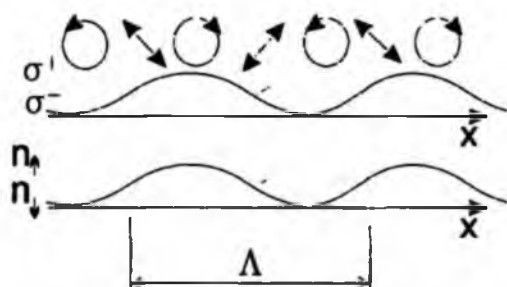
$$N = \frac{\xi \alpha \tau I}{\hbar \omega} \quad (5.23)$$

Pro pulzy kratší než doba rekombinace je potřeba ve vztahu (5.23) dosadit místo hodnoty τ čas, který je řádově roven době trvání pulzu.

Spinová mřížka

Polarizační mřížka se vytvoří pokud použijeme dvou excitačních pulzů se vzájemně kolmou lineární polarizací. V tomto případě se nevytvoří modulace intenzity elektrického pole, ale modulace polarizace elektrického pole. Za podmínky, že oba excitační pulzy mají stejnou intenzitu, pak se polarizace ve směru osy x mění od lineární ke kruhové, kolmo lineární až k opačně kruhové polarizaci. Perioda této modulace je stejná, jako při modulaci amplitudové mřížky.

Použijeme-li navíc poznatek, že v CdTe dochází při excitaci kruhově polarizovaným světlem k excitaci spinové nerovnováhy, pak zjistíme, že výsledek excitace vzorku dvěma pulzy se vzájemně kolmou polarizací má za následek vytvoření tzv. spinové mřížky. Jinak řečeno, v celém vzorku bude konstantní koncentrace elektronů a děr. Jediné, co se bude měnit s prostorovou souřadnicí x je modulace spinové polarizace. Tato modulace bude mít prostorovou periodu Λ vyjádřenou vztahem (5.6). Vzhledem k prostorovému oddělení pravotočivé a levotočivé polarizace bude prostorově oddělena i mřížka se spinem nahoru a mřížka se spinem dolů. Schématické znázornění modulace polarizace interferenčního pole a vytvoření spinové mřížky je zobrazeno na obrázku 5-2. Navíc musíme uvážit fakt, že díry ztrácejí svou spinovou koherenci velice rychle, a to na časové škále řádu femtosekund. Z toho plyne, že budeme-li sledovat difrakční účinnost takto vzniklé mřížky na pikosekundové časové škále, pak budeme studovat pouze spinovou polarizaci elektronů. Stejně tak rozpad této mřížky bude způsoben pouze difúzním koeficientem elektronů a rozpad mřížky bude záviset pouze na spinové relaxaci elektronů.



Obrázek 5-2: Znázornění prostorové modulace polarizace elektromagnetického pole v závislosti na souřadnici x při excitaci dvěma pulzy se vzájemně kolmou polarizací.

5.1.5 Další využití LIG

Vedle využití laserem indukované mřížky ke studiu rekombinace nosičů náboje, difúzních koeficientů, dob spinové koherence a povrchové rekombinace lze tuto velice silnou experimentální metodu použít ke studiu mnohých dalších vlastností materiálů. Mezi takové veličiny patří například závislost tepelné difúze na teplotě, účinné průřezy Augerovy a bimolekulární rekombinace nebo studium příměsových hladin. V polovodičích to umožňuje především velká spousta nelineárních jevů, které se projevují při různých silných intenzitách excitačního pole. Studium změn absorpce a indexu lomu je důležité pro takové aplikace jako jsou holografie, fázová konjugace, optická bistabilita a laserový modelocking.

5.2 Autodifrakce [49]

Autodifrakce (někdy též self-difrakce) patří stejně jako třívazková metoda laserem indukované mřížky do kategorie experimentů založených na principu čtyř-vlnového směšování. Autodifrakce je speciálním případem třívazkové laserem indukované mřížky (dva excitační a jeden sondovací pulz). Při autodifrakci používáme pouze dva pulzy o srovnatelné intenzitě, které se stýkají v jednom místě v prostoru, ale jsou odděleny časově. Nedochází tedy k jejich fyzickému překryvu.

5.2.1 Princip metody

Principiální schéma experimentální realizace autodifrakce viz obrázek 5-1. První, koherentní pulz k_B excituje jednotlivé atomy, jejichž vlnové funkce jsou po určitou dobu koherentní. Neboli vyexcitujeme dipóly, které kmitají po určitou dobu koherentně, ve fázi s excitačním pulzem. Této době koherence se říká orbitální doba koherence. Pokud je tento rozfázovací čas dostatečně dlouhý, pak je možné vytvořit excitovanou mřížku i bez překryvu obou excitačních pulzů. V kontextu obecného pohledu na interferenci to znamená, že interferenční tenzor bude nulový. Mřížka se vytvoří interakcí koherentně rozkmitaných dipólů s druhým excitačním pulzem.

Autodifrakci lze nejlépe pozorovat na tenkých vzorcích s dostatečně slabou absorpcí. Jednoduchost realizace, ale složitá teoretická interpretace tuto metodu předurčuje ke kvalitativnímu studiu vlastností materiálů.

5.2.2 Matematický model

Experimentální realizace autodifrakce je přímočará, ale teoretický popis je složitější než v případě oddělení excitačního a sondovacího pulzu. Vytvoření mřížky bez překryvu obou excitačních pulzů je možné v případě, že fáze prvního pulzu je uchována v materiálu a uchována až do příchodu druhého pulzu.

První excitační pulz interaguje nejprve s elektronovými stavy atomů, které rozkmitá. Elektrony začnou oscilovat ve fázi s působícím světelným polem. Tyto oscilace indukují vytvoření oscilujících dipólů, což se projeví v makroskopické polarizaci, která je dána hustotou kmitajících dipólů. Fáze prvního excitačního pulzu tedy může být uchována v makroskopické polarizaci materiálu.

Vzhledem k zákonům kvantové mechaniky, atomové dipóly mohou existovat v případě, že atom lze popsat koherentní superpozicí dvou energetických stavů (základní a excitovaný stav). Fáze prvního pulzu je uchována v relativní fázi těchto dvou stavů. Po odeznění prvního excitačního pulzu se polarizace rozpadá s časovou konstantou T_{p2} , která je mnohem kratší než doba zániku samotné excitace T_{p1} . Jinak řečeno, světlem indukované dipóly přežívají v materiálu po dobu T_{p1} , ale vzájemná koherence dipólů setrvává pouze po dobu T_{p2} . Doba rozpadu polarizace T_{p2} se také nazývá dobou relaxace fáze.

Pro jednoduchost uvažujme obdélníkové pulzy o době trvání t_p , které jsou vůči sobě zpožděny o dobu τ , $\tau > t_p$. Druhý excitační pulz s odlišným vlnovým vektorem šíření k_A , vytvoří mřížku za podmínky $\tau < T_{p2}$.

Materiál popíšeme dvou-hladinovým systémem s energií přechodu $\hbar\omega_0$, koncentrací atomů N a rozdílem obsazení dolního (N_a) a horního (N_b) stavu $\gamma = N_a - N_b$. Vývoj tohoto systému lze popsat jednak kinetickou rovnicí popisující vývoj atomových stavů (5.24)

$$\frac{d\gamma(\mathbf{r},t)}{dt} + \frac{1}{T_{p1}}(\gamma(\mathbf{r},t) - N) = -\frac{2E}{\hbar\omega_0} \frac{dP(\mathbf{r},t)}{dt} \quad (5.24)$$

a jednak rovnicí popisující makroskopickou polarizaci v přiblížení harmonického oscilátoru (5.25).

$$\frac{d^2P(\mathbf{r},t)}{dt^2} + \frac{2}{T_{p2}} \frac{dP(\mathbf{r},t)}{dt} + \omega_0^2 P(\mathbf{r},t) = \frac{2\omega_0}{\hbar} \mu^2 \gamma E(\mathbf{r},t) \quad (5.25)$$

V rovnici (5.25) má veličina μ význam dipólového maticového elementu mezi dvěma uvažovanými hladinami atomů.

Tyto rovnice lze relativně jednoduše vyřešit za předpokladu obdélníkových pulzů o stejné délce, zanedbání exponenciálního doznívání polarizace vybuzené prvním pulzem a za předpokladu pomalu proměnné amplitudy elektrického pole a polarizace (SVEA). Výsledný rozdíl populací jednotlivých hladin bude v čase po odeznění druhého excitačního pulzu dán vztahem (5.26).

$$\gamma(\tau + t_p) = N \left[\cos^2(\Omega t_p) - \sin^2(\Omega t_p) e^{\frac{\tau}{T_{p1}}} \cos((\mathbf{k}_A - \mathbf{k}_B) \cdot \mathbf{r}) \right] \quad (5.26)$$

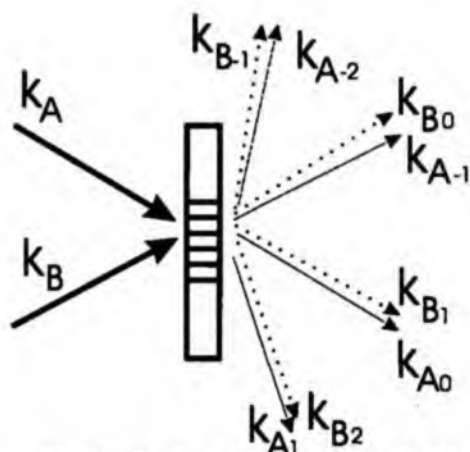
Z řešení (5.26) je zřejmé, že skutečně dojde k modulaci populace hladin ve tvaru mřížky, která má stejnou prostorovou periodu jako běžná mřížka vytvořená překrývajícími se pulzy. Podrobnější analýzu autodifrakce lze nalézt např. v [50].

5.2.3 Autodifrakce na tenké mřížce

Při použití vhodných aproximací při řešení Maxwellových rovnic se započtením vlastností materiálu lze dojít k intenzitě difraktovaného světla do m -tého řádu při autodifrakci (5.27).

$$I_{\pm m} = TI_0 [J_m^2(\phi) + J_{m+1}^2(\phi)] \quad (5.27)$$

Ve vztahu (5.27) je argument Besselových funkcí dán vztahem $\phi = 2\pi\Delta nd / \lambda$. Přítomnost součtu kvadrátů Besselových funkcí řádu m a $m+1$ lze vysvětlit intuitivně. Označme oba dopadající svazky \mathbf{k}_A , \mathbf{k}_B . Oba mají stejnou intenzitu a proto je symetrická situace, zda si proces difrakce představíme jako difrakci svazku \mathbf{k}_A na poli koherentní polarizace vytvořené svazkem \mathbf{k}_B , nebo jako difrakci svazku \mathbf{k}_B na polarizaci vytvořené svazkem \mathbf{k}_A . To mimo jiné znamená, že v m -tém difrakčním řádu se projeví jednak m -tý difrakční řád jednoho svazku a jednak $m+1$ difrakční řád druhého svazku. Pro difrakční řád $-m$ je situace analogická (viz obrázek 5-3).



Obrázek 5-3: Schéma principu autodifrakce. Číselný index značí difrakční řád svazku *A* resp. *B* na koherentní polarizaci vyvolané svazkem *B* resp. *A*.

5.3 Metoda excitace a sondování

Tato metoda je založena na použití dvou krátkých laserových pulzů, kde jeden pulz o vysokém výkonu vybudí ve studovaném materiálu termodynamickou nerovnováhu, nejčastěji v podobě fotoexcitovaných nosičů náboje a druhý pulz o řádově nižší intenzitě slouží k sondování takto vyvolaných změn materiálových parametrů. Vliv změny různých parametrů na opticky měřitelné veličiny, jakými jsou propustnost, reflektivita nebo absorbance jsou popsány v kapitole o laserem indukované mřížce (viz kap. 5.1.3). Zde se omezíme pouze na souvislost mezi koncentrací nosičů náboje a změnou propustnosti, příp. absorbance.

5.3.1 Základní vztahy

V našich experimentech studujeme změnu tzv. diferenciální propustnosti, která je definována vztahem (5.28), ve kterém vystupuje T_0 jako lineární propustnost a T je nerovnovážná propustnost způsobená silným excitačním pulzem.

$$\frac{\Delta T}{T_0} = \frac{T - T_0}{T_0} \quad (5.28)$$

Při vzájemném zpoždění excitačního a sondovacího pulzu lze proměřit, jak se vyvíjí pozměněná propustnost T v různých časech po excitaci vzorku. Základní souvislost mezi diferenciální propustností a koncentrací nosičů náboje je dána vztahem (5.29).

$$\frac{\Delta T}{T_0} = \sigma n d \quad (5.29)$$

Ve vztahu (5.29) vystupuje účinný průřez absorpce σ , koncentrace elektronů n a tloušťka vzorku d . Lze ukázat, že do změn propustnosti, které měříme v experimentu excitace a sondování není potřeba zahrnovat příspěvek děr [51].

Spinové vlastnosti nosičů náboje lze studovat pomocí změn diferenciální propustnosti pro různě kruhově polarizované pulzy. Užitím výběrových pravidel zjistíme, že kruhově polarizovaným světlem jsou přechody elektronů z pásu těžkých děr v polovodičích s kubickou symetrií třikrát pravděpodobnější než přechody z pásu lehkých děr. Neboli excitačním pulzem

s pravotočivou kruhovou polarizací vybudíme spinovou nerovnováhu se spinem dolů a naopak při excitaci levotočivě kruhově polarizovaným světlem vybudíme spinovou nerovnováhu se spinem převážně orientovaným nahoru. Vztah (5.29) dávající do souvislosti diferenciální propustnost a koncentraci nosičů lze přepsat pro spinově polarizované nosiče náboje na tvar (5.30), ve kterém indexy PP , resp. PL značí excitaci světlem pravotočivě kruhově polarizovaným a sondování světlem buď také pravotočivě kruhově polarizovaným, resp. světlem levotočivě kruhově polarizovaným.

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta T}{T_0}\right)^{PP} &= d(\sigma_1 n^\downarrow + \sigma_2 n^\uparrow) \\ \left(\frac{\Delta T}{T_0}\right)^{PL} &= d(\sigma_2 n^\downarrow + \sigma_1 n^\uparrow) \end{aligned} \quad (5.30)$$

Ve vztahu (5.30) vystupuje účinný průřez absorpce z pásu těžkých děr σ_1 a účinný průřez absorpce z pásu lehkých děr σ_2 . Veličiny n^\uparrow a n^\downarrow značí koncentrace elektronů se spinem nahoru, resp. dolů. S uvážením výběrových pravidel, která v našem případě říkají, že $\sigma_1 = 3\sigma_2$ lze vyjádřit stupeň spinové polarizace P vztahem (5.31 a).

$$P = 2 \frac{(\Delta T/T_0)^{LL} - (\Delta T/T_0)^{PL}}{(\Delta T/T_0)^{LL} + (\Delta T/T_0)^{PL}} \quad (5.31 \text{ a})$$

Ze vztahu (5.31 a) si lze přímo definovat stupeň kruhové polarizace P_{DCP} (5.31 b). Stupeň kruhové polarizace definovaný vztahem (5.31 b) budeme v následujícím textu značit pouze DCP .

$$P_{DCP} = DCP = \frac{(\Delta T/T_0)^{LL} - (\Delta T/T_0)^{PL}}{(\Delta T/T_0)^{LL} + (\Delta T/T_0)^{PL}} \quad (5.31 \text{ b})$$

Definice (5.31 b) je výhodnější oproti (5.31 a) v tom, ačkoliv se liší pouze faktorem 2, že veličinu DCP jsme schopni přímo měřit v experimentu excitace a sondování.

Stupeň kruhové polarizace je poloviční oproti hodnotě stupně spinové polarizace elektronů, neboť výběrová pravidla se zde uplatňují dvakrát. Jednak při excitaci vzorku a jednak při jeho sondování.

Vedle veličiny DCP lze definovat obdobným způsobem veličinu DLP , což je stupeň lineární polarizace. Definici stupně lineární polarizace získáme ze vztahu (5.31) záměnou indexů $L \rightarrow H$, $P \rightarrow V$, kde V značí vertikální a H horizontální polarizaci excitačního resp. sondovacího pulzu. Tato veličina je vhodná ke studiu izotropie materiálu, neboť nám říká, jak velký je rozdíl interakce světla s látkou ve dvou na sebe vzájemně kolmých směrech. Tyto směry jsou dány právě příslušnými lineárními polarizacemi.

5.3.2 Rozšířený matematický model

Veličiny diferenciální propustnosti, stupně kruhové a lineární polarizace jsou základní parametry, které měříme v experimentu excitace a sondování. Jak již bylo řečeno, tyto veličiny přímo souvisí s koncentracemi elektronů. Pro interpretaci experimentálních dat metodu excitace a sondování je tedy nutně znát základní procesy ovlivňující dynamiku nosičů náboje.

Základní fyzikální procesy ovlivňující dynamiku nosičů náboje jsou rekombinace, difúze a efekty elektrického pole. Popisem těchto jednotlivých příspěvků se budeme nyní zabývat.

Jednočásticová rekombinace

Nejjednodušším procesem z hlediska fenomenologického popisu pomocí tzv. kinetických rovnic je proces rekombinace přes rekombinační centra uvnitř zakázaného pásu. Tuto dynamiku nosičů náboje popisuje kinetická rovnice (5.32).

$$\frac{dn}{dt} = G(t) - \frac{n}{\tau}, \text{ kde } G(t) = \frac{\xi \alpha I(t)}{h\nu} \quad (5.32)$$

Člen $G(t)$ vystupující v rovnici (5.32) popisuje generaci nosičů náboje světlem o časově proměnné intenzitě $I(t)$, frekvenci ν , absorpci materiálu α a kvantové účinnosti ξ . Toto je jeden z mála modelů, který lze v případě jednoduchého tvaru časové závislosti excitační intenzity $I(t)$ vyřešit analyticky. V případě uvážení excitace ve tvaru Diracovy δ -funkce v čase nula je řešením monoexponenciální doznívání koncentrace nosičů náboje.

Zahrnutí bimolekulárních a Augerových procesů

Tyto rekombinační kanály lze zahrnout velice jednoduše již do základního modelu popsaného rovnicí (5.32). Bimolekulární rekombinaci popíšeme přidáním členu $-\gamma n^2$ na pravou stranu rovnice, kde koeficient γ popisuje míru bimolekulární rekombinace. Augerovy procesy popíšeme obdobně, jen s přidáním členu $-B_1 n^3$. Tyto procesy začínají dominovat při vyšších excitačních intenzitách.

Při zahrnutí těchto rekombinačních mechanismů již nelze modifikovanou rovnicí (5.32) analyticky vyřešit, neboť se jedná o silně nelineární problém. Je proto nutné přistoupit k numerickým simulacím.

Elektrické pole nehomogenně rozloženého náboje – vliv pastí

Při nehomogenní excitaci nosičů náboje a přítomnosti past'ových hladin uvnitř zakázaného pásu může dojít k vytvoření stínícího elektrického pole. Toto pole (E_{SC}) je tvořeno nehomogenní koncentrací elektronů na pastech a může ovlivňovat následnou dynamiku ostatních, na pastech nezachycených, nosičů náboje.

Při homogenním obsazení past'ových hladin se toto pole vyruší a není potřeba s ním počítat.

Demberovo pole

Demberovo pole vzniká při difúzi v důsledku různých pohyblivostí elektronů a děr. Elektrony mají většinou větší pohyblivost, tudíž mají tendenci při difúzním pohybu předhánět díry. Přitažlivou kulombickou interakcí dochází k brzděmu efektu v pohybu elektronů. Stejně tak by mohlo docházet k urychlování děr, ale protože díry mají několikanásobně větší efektivní hmotnost, je tento mechanismus potlačen. Demberovo napětí lze vyjádřit vztahem (5.33), kde b je poměr vyšší pohyblivosti k menší, p_0 , n_0 jsou koncentrace děr a elektronů tvořících konstantní pozadí a δn a δp (za předpokladu $\delta n = \delta p$) jsou nerovnovážné koncentrace nosičů náboje [14].

$$V_{Dember} = \frac{kT}{e} \frac{b-1}{b+1} \ln \left(1 + \frac{(b+1)\delta n}{bn_0 + p_0} \right) \quad (5.33)$$

Při vyšších excitacích nosičů náboje dominuje Demberovo pole nad polem způsobeným prostorovým vázaným nábojem zachycených elektronů na pastech E_{sc} [41].

Tepelné efekty

Při absorpci světla dochází k zahřívání vzorku. Neboť index lomu i absorpční koeficient závisí na teplotě, je potřeba počítat i s vlivem tepelných efektů. Distribuce tepla ve vzorku se řídí rovnicí vedení tepla. Rovnici vedení tepla lze za speciálních omezujících předpokladů analyticky vyřešit. Jedním z omezujících předpokladů je, že teplotní difúzní koeficient nezávisí na teplotě a veškeré veličiny vystupující v rovnici vedení tepla jsou skaláry, což je dobře splněno v materiálech s kubickou symetrií.

Tepelné efekty se projevují obvykle na časové škále 10^{-4} - 10^{-2} s. I přesto, že je dynamika těchto efektů velmi pomalá, může ovlivnit měření, a to především v transmisní geometrii. Pokud sondovací pulz nedopadá přesně do středu excitované zóny, pak může dojít k jeho odklonění na klesající distribuci průměrné teploty, což způsobí rozmazání detekovaného signálu.

Pro případ silně absorbujících vzorků lze vzít řešení rovnice vedení tepla ve tvaru součinu řešení v rovině kolmé ke směru šíření světla a funkce proměnné ve směru šíření světla napříč vzorkem.

Matematický model [34, 40, 41]

Výše uvedené mechanismy ovlivňující dynamiku nosičů náboje lze popsat pomocí soustavy parciálních diferenciálních kinetických rovnic eliptického a parabolického typu. V níže uvedené soustavě vázaných diferenciálních rovnic jsou zahrnuty procesy rekombinace, Augerových a bimolekulárních procesů, záchytu a uvolňování elektronů a děr na pastech jednoho druhu, difúze, Demberovo pole a vliv pole nábojů zachycených na pastech.

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \underbrace{\frac{\xi \alpha I(t)}{h\nu}}_{\text{zdrojový člen}} - \underbrace{\gamma_r (np - n_0 p_0)}_{\text{rekombinace}} - \underbrace{B_1 (n^2 p - n_0^2 p_0)}_{\text{Augerovy procesy}} - \underbrace{\alpha_n n (N_T - n_i)}_{\text{záchyt elektronů na pastech}} + \underbrace{\beta_n n_i}_{\text{zpětné uvolnění elektronu do vod. pásu}} + \frac{1}{e} \frac{\partial j_e}{\partial x} \quad (5.34)$$

$$\frac{\partial p}{\partial t} = \underbrace{\frac{\xi \alpha I(t)}{h\nu}}_{\text{zdrojový člen}} - \underbrace{\gamma_r (np - n_0 p_0)}_{\text{rekombinace}} - \underbrace{B_2 (p^2 n - p_0^2 n_0)}_{\text{Augerovy procesy}} - \underbrace{\alpha_p p n_i}_{\text{záchyt děr na pastech}} + \underbrace{\beta_p (N_T - n_i)}_{\text{zpětné uvolnění díry do val. pásu}} - \frac{1}{e} \frac{\partial j_h}{\partial x} \quad (5.35)$$

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} = \alpha_n n (N_T - n_i) - \beta_n n_i + \beta_p (N_T - n_i) - \alpha_p p n_i \quad (5.36)$$

$$j_e = \underbrace{en\mu_e E_{sc}}_{\text{proud způsobený polem vázaných nábojů}} + \underbrace{\mu_e kT \frac{\partial n}{\partial x}}_{\text{proud způsobený difúzí}} \quad (5.37)$$

$$j_h = ep\mu_h E_{sc} - \mu_h kT \frac{\partial p}{\partial x} \quad (5.38)$$

$$\frac{\partial E_{sc}}{\partial x} = -\frac{e}{\epsilon_0 \epsilon_r} \underbrace{(n - p)}_{\text{Demberovo pole}} - \frac{e}{\epsilon_0 \epsilon_r} \underbrace{(n_i - n_0)}_{\text{pole nehomogenní koncentrace vázaných nábojů na pastech}} \quad (5.39)$$

Povrchovou rekombinaci lze zahrnout v tomto modelu okrajovou podmínkou (5.40), viz [40].

$$\left. \frac{\partial n(x,t)}{\partial x} \right|_{x=0} = \frac{S}{D} n(x,t) \quad (5.40)$$

Rovnice (5.34) a (5.35) popisují dynamiky elektronů s koncentrací n , resp. děr s koncentrací p . Rovnice (5.36) popisuje obsazení pastové hladiny s koncentrací n_t uvnitř zakázaného pásu. Rovnice (5.37, 5.38) popisují proudové hustoty elektronů j_e a děr j_h a výrazem (5.39) je zahrnuto elektrické pole E_{SC} ovlivňující dynamiku nosičů náboje skrze Demberovo pole a pole nerovnoměrně vázaných nábojů na pastech. Koeficienty vystupující ve zdrojovém členu mají význam: ξ ...kvantová účinnost, α ...absorpční koeficient, I ...intenzita excitačního světelného pole, ν ...frekvence použitého světla. Dále koeficienty vystupující v rovnicích (5.34-5.40) mají význam: γ_r ...koeficient bimolekulární rekombinace, B_1 , B_2 ...koeficient Augerových rekombinačních mechanismů pro elektrony a pro díry, α_n , (α_p) ...koeficient záchytu elektronů (děr) na pastech, β_n (β_p)...koeficient zpětné excitace elektronu (díry) zpět do vodivostního (valenčního) pásu, N_T ...koncentrace pastí, n_0 (p_0)...koncentrace elektronů (děr) v termodynamické rovnováze, μ_e (μ_h)...pohyblivost elektronů (děr), k ...Boltzmannova konstanta, T ...termodynamická teplota, e ...velikost elementárního náboje, ϵ_0 ...permitivita vakua, ϵ_r ...relativní permitivita prostředí a nakonec v okrajové podmínce (5.40) vystupuje S jakožto koeficient povrchové rekombinace a D difúzní koeficient.

Je zřejmé, že se jedná o nelineární problém, a proto je k jeho řešení přistupovat velice opatrně. Řešení za několika zjednodušujících předpokladů pro konkrétní naměřená data uvádějí V. Mizeikisa a kol. [40], K. Jarasiunas a kol. [41] nebo M. Sudzius a kol. [34].

V kapitole 8 se zabýváme numerickým řešením těchto rovnic za silně zjednodušujících předpokladů, kde v jednom modelu uvažujeme bimolekulární a Augerovy rekombinační procesy, v dalším, rozšířeném modelu, započítáváme vliv pastí na dynamiku elektronů a v posledním modelu počítáme vliv difúze a povrchové rekombinace.

6 Studované vzorky

Monokrystal CdTe, ze kterého byly vzorky vyrobeny byl připraven Czochralského metodou růstu krystalů. Krystal nese označení F36. Vyříznuté vzorky nesou označení Y1 a Y3. Písmeno Y značí vertikální pozici na krystalu, ze které byl vzorek vyříznut.

Vzorky byly upraveny pro měření v transmisní geometrii. To obnášelo především dostatečné ztenčení vzorků a příslušnou povrchovou úpravu. Ztenčení vzorků bylo provedeno na pracovišti Akademie věd ČR v Praze. Vzorek Y3 byl ztenčen na zhruba $2 \mu\text{m}$ a vzorek Y1 na $1,5 \mu\text{m}$. Vzorek Y3 má oba povrchy leptané, naopak vzorek Y1 je z obou stran pouze leštěný. To vede mimo jiné k tomu, že vzorek Y3 je kvalitnější, neboť leptáním se odstraní narušená povrchová vrstva vzniklá leštěním vzorku.

Tyto vzorky byly již dříve použity pro studium dynamiky spinové relaxace elektronů při 300 K [28].

Hlavní experimentální úsilí bylo věnováno kvalitnějšímu vzorku Y3, přičemž vzorek Y1 sloužil především jako vzorek srovnávací.

7 Experimentální výsledky

Nejprve jsme provedli na studovaných vzorcích měření absorpčních spekter při různých teplotách. Po této základní charakterizaci následovalo měření dob orbitální koherence metodou autodifrakce. Spinové vlastnosti byly studovány metodou excitace a sondování, a to jak v režimu spektrálně integrovaném, tak v režimu spektrálně rozlišeném. Původně plánované měření difúzních koeficientů pomocí laserem indukované mřížky nebylo možné z časových důvodů realizovat. Tato problematika proto bude studována v navazujících projektech.

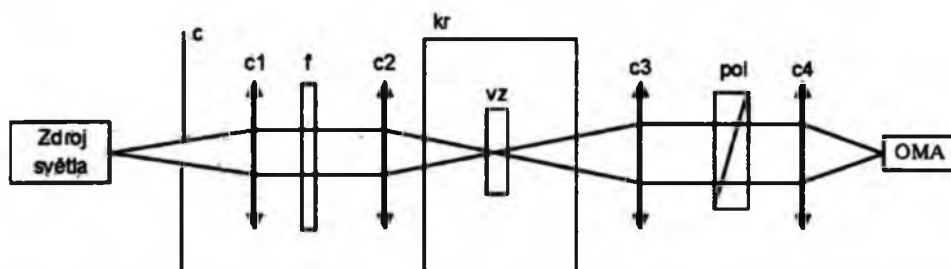
7.1 Lineární absorpce

Měřením absorpčních spekter jsme se snažili určit základní parametry studovaného materiálu. Jednalo se především o určení skutečné teploty vzorku, tedy o určení tepelného kontaktu mezi vzorkem a chladicím prstem kryostatu. Dále byla věnována pozornost šířce zakázaného pásu a jeho teplotní závislosti. Taktéž jsme studovali projevy excitonů při různých teplotách a při 20 K jsme zkoumali homogenitu vzorku.

7.1.1 Schéma experimentu

Experimentální uspořádání pro měření absorpce je velice jednoduché, viz obrázek 7-1. Jako zdroj světla jsem použili žárovku připojenou ke stabilizovanému zdroji napětí 12 V. Červeným hranovým filtrem jsme se omezili na spektrální oblast, která byla pro nás nejzajímavější. Tedy červená spektrální oblast v rozsahu zhruba 1,55-1,62 eV. Po fokusaci svazku na vzorek byl paprsek poslán přes polarizátor a následně do optického mnohakanálového analyzátoru (OMA). Použitá vstupní štěrba 25 μm a mřížka 1200 vrypů/mm zajišťovali dostatečné spektrální rozlišení 0,5 meV. Před měřením byl spektrometr (OMA) kalibrován kryptonovou kalibrační lampou.

Ve všech experimentech byl používán heliový kryostat s uzavřeným cyklem (tzv. closed cycle cryostat). Tento kryostat umožňuje změnu teplot v rozmezí zhruba 8-300 K.



Obrázek 7-1: Experimentální uspořádání pro měření lineární absorpce. Zkratky: c...clonka, c1, c2, c3, c4...čočky, f...červený hranový filtr, kr...kryostat, vz...vzorek, pol...polarizátor, OMA...optický mnohakanálový analyzátor. Použitá mřížka 1200 vrypů/mm, vstupní štěrba 25 μm , rozlišovací schopnost 0,5 meV.

7.1.2 Určení tepelného kontaktu

Při měření s heliovým kryostatem s uzavřeným cyklem nastává problém s určením skutečné teploty vzorku. Uvnitř kryostatu je vakuum a teplo se tudíž ze vzorku odvádí tzv. chladicím prstem. Reálná teplota na vzorku proto velice záleží na tom, jak dobrý je tepelný kontakt mezi vzorkem a chladicím prstem. Teplota, kterou ukazuje digitální termočlánek je snímána na chladicím prstu kousek vedle vzorku, nikoliv přímo na vzorku.

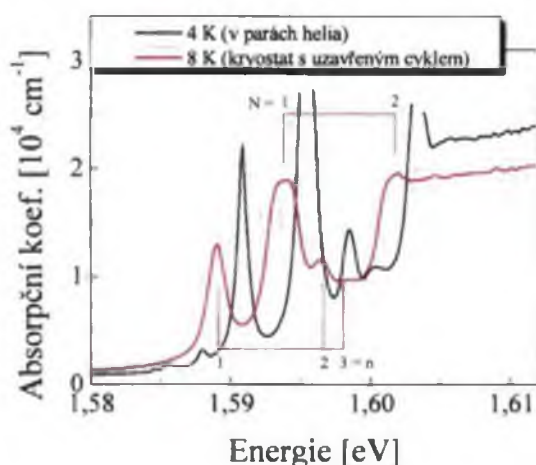
Princip určení skutečné teploty na vzorku je následující. K dispozici jsme měli absorpční spektrum studovaného vzorku změřené při teplotě 4 K. Měření provedli Horodyský

a kol. [28]. Toto měření bylo realizováno v kryostatu s parami helia, tudíž lze předpokládat, že teplota vzorku byla velice dobře definována teplotou par helia. Ze známé souvislosti šířky zakázaného pásu E_g a polohy excitonových piků E_n na kvantovém čísle n (7.1) lze určit jak šířku zakázaného pásu tak vazebnou energii excitonů ΔE_{ex} .

$$E_n = E_g - \frac{\Delta E_{ex}}{n^2} \quad (7.1)$$

Poté stačí využít znalost teoretické závislosti šířky zakázaného pásu na teplotě (4.1) a spočítat, jaké teplotě odpovídá šířka zakázaného pásu určená ze vztahu (7.1). V obrázku 7-2 je pro srovnání spektrum měřené při 4 K v parách helia a spektrum měřené v kryostatu s uzavřeným cyklem při teplotě na chladicím prstu 8 K. Horizontální posun obou spekter je způsoben právě rozdílnými teplotami, rozdíly v detailní struktuře spekter jsou dány jednak rozdílnými teplotami, jednak rozlišovací schopností použitých spektrometrů.

Zjistili jsme, že v případě, že termočlánek v kryostatu s uzavřeným cyklem ukazuje teplotu 8 K, je reálná teplota na vzorku zhruba 22 K.



Obrázek 7-2: Srovnání absorpčních spekter při 4 K a při nejnižší dosažitelné teplotě v kryostatu s uzavřeným cyklem (v kryostatu na termočlátku blíže ke vzorku byla teplota 8 K). Absorpční píky příslušející hlavnímu, resp. odštěpenému excitonovému piku jsou vyznačeny kvantovým číslem N , resp. n . Tato kvantová čísla vystupují ve vztahu (7.1), kde jsou označeny symbolem n .

Ten samý postup jsme aplikovali i při vyšších teplotách. V tabulce č.2 jsou uvedeny v levém sloupci teploty, které ukazoval termočlánek a v pravé sloupci reálné teploty vzorku. Pokud nebude řečeno jinak, bude teplota v následujícím textu značit skutečnou teplotu vzorku.

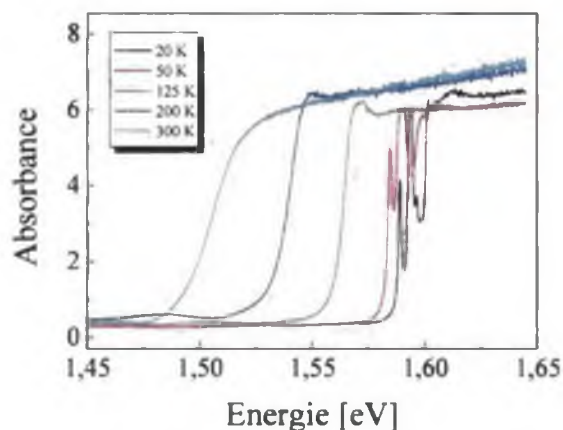
Teplota na termočlátku	Skutečná teplota vzorku
8	22
25	27
50	43
75	64
100	94
125	120
150	150
175	175
200	200

Tabulka č.2: Srovnání teploty měřené termočlátkem v kryostatu a skutečné teploty vzorku.

Z tabulky č.2 je patrný postup při měření. Nejdříve bylo měření prováděno při nejnižší dosažitelné teplotě v použitém kryostatu, tedy při teplotě 8 K na termočlátku. Poté byla zvyšována teplota po 25 K až na pokojovou teplotu 300 K . Při nejnižší teplotě je rozdíl teplot na termočlátku a skutečné teploty vzorku dán především nedokonalým tepelným kontaktem mezi vzorkem a chladicím prstem kryostatu, tedy nedochlazením vzorku. V následujících měřeních při vyšších teplotách se stále projevuje nedokonalost tepelného kontaktu, ale v opačném smyslu. Při ohřívání se vzorek nestačil dostatečně zahřát, a tudíž reálná teplota byla nižší, než teplota na termočlátku. Při měření bylo po každém nastavení vyšší teploty čekáno 5 minut poté, co se na termočlátku objevila nastavená teplota. Neboli poté, co chladicí prst dosáhl nastavené vyšší teploty bylo počkáno dalších 5 minut, aby se ustálila tepelná rovnováha mezi vzorkem a chladicím prstem. Nic méně z výše uvedených závěrů je zřejmé, že tuto dobu by bylo potřeba prodloužit. Určení této doby by mělo být předmětem detailnějšího studia tepelného kontaktu každého konkrétního vzorku.

7.1.3 Teplotní závislost šířky zakázaného pásu

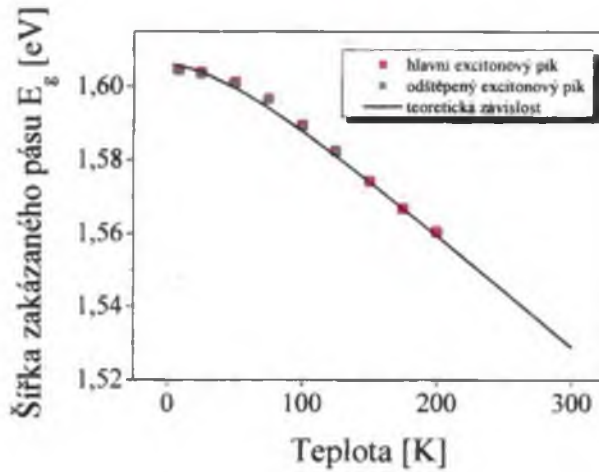
Ze vztahu (7.1) byla vedle vazebné energie excitonu určena také šířka zakázaného pásu a její závislost na teplotě. Absorpční spektra při vybraných teplotách jsou zobrazena v obrázku 7-1. Spektra se v závislosti na teplotě kvalitativně mění. Při nejvyšší teplotě 300 K je z absorpčního spektra zřejmá hrana zakázaného pásu, která se při snižování teploty posouvá k vyšším energiím. Při snížení teploty vzorku na zhruba 200 K se v absorpčním spektru začne projevovat excitonový pik, který se nachází přímo na hraně zakázaného pásu. Při teplotě 125 K se začne objevovat další absorpční pik. Tento pik je způsoben rozštěpením hlavního excitonového piku působením mechanického napětí uvnitř vzorku. Vzorek je totiž nalepen na podložním sklíčku o odlišné tepelné roztažnosti, proto se při nízkých teplotách začne projevovat vliv mechanického napětí.



Obrázek 7-3: Závislost absorbance na teplotě v teplotním rozsahu 20-300 K

Z poloh excitonových piků byla určena teplotní závislost šířky zakázaného pásu na teplotě. Zde vyvstává problém s určením vazebné energie excitonu. Vztah (7.1) je rovnice o dvou neznámých (E_g , ΔE_{ex}). Proto potřebujeme dvě rovnice, které získáme odečtením excitonových piků s kvantovým číslem $n=\{1,2\}$, viz obrázek 7-2. Při vyšších teplotách ale tyto satelity excitonů s kvantovým číslem $n=2$ mizejí a není tedy možné rovnicí (7.1) použít. Ve výpočtu neznámé šířky zakázaného pásu a vazebné energie excitonu tedy u vyšších teplot ($T>30\text{ K}$) předpokládáme, že vazebná energie excitonu nezávisí příliš na teplotě a je tudíž v uvažovaném rozsahu teplot konstantní. Je to pouze první aproximace, ale srovnáním takto získaných závislostí šířky zakázaného pásu na teplotě lze usoudit, že tato aproximace je

oprávněná. Srovnání je provedeno v obrázku 7-4. Tímto způsobem byla určena vazebná energie excitonu $10,4 \text{ meV}$.



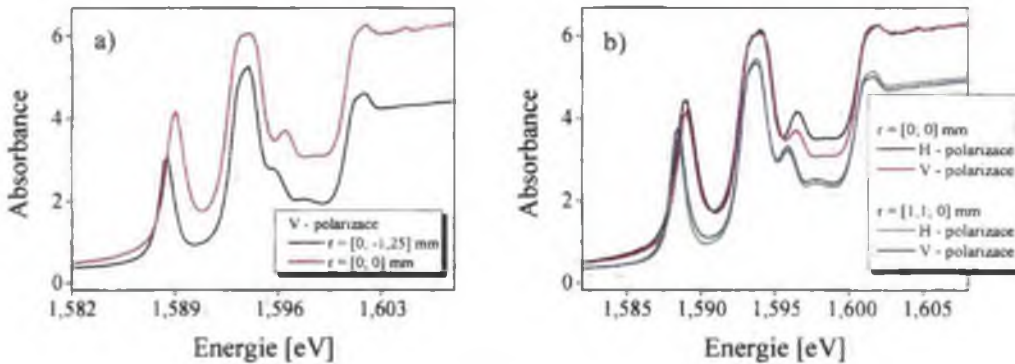
Obrázek 7-4: Teplotní závislost šířky zakázaného pásu určená odečtem energií z hlavního excitonového piků a z excitonového piků odštěpeného působením mechanického napětí. Nafitováním naměřených hodnot Varshniho formulí (4.1) získáme parametry $E_0=(1,605\pm 0,001) \text{ K}$, $a=(-4,2\pm 0,6)\times 10^{-4} \text{ eV/K}$, $b=(160\pm 50) \text{ K}$. Pro srovnání je uvedena i teoretická závislost šířky zakázaného pásu na teplotě, viz vztah (4.1) uváděný v [29].

7.1.4 Nehomogenost vzorku

Nehomogenost vzorku jsme určovali při teplotě 20 K na pěti různých místech vzorku. Absorpční spektra byla měřena polarizačně rozlišená. Tedy absorpční spektrum pro vertikální (V) a horizontální (H) polarizaci.

Výsledky měření shrnují obrázky 7-5 a) a b). První obrázek 7-5 a) ukazuje, jak závisí velikost odštěpení excitonového piků na poloze na vzorku, neboli ukazuje na nehomogenní mechanické napětí uvnitř vzorku. Z obrázku je zřejmé, že poloha hlavního excitonového piků na poloze na vzorku nezávisí, z čehož lze usuzovat na homogenní rozložení teploty v celém objemu vzorku.

Obrázek 7-5 b) ukazuje polarizačně závislé oblasti absorpčního spektra. Touto oblastí je především část mezi hlavním excitonovým pikem a hranou zakázaného pásu. Rozdíl mezi oběma polarizacemi je opět závislý na poloze na vzorku. Na většině míst vzorku je rozdíl mezi oběma polarizacemi v dané spektrální oblasti velmi výrazný, jak je vidět ze spekter měřených uprostřed vzorku (poloha $r=[0,0] \text{ mm}$).



Obrázek 7-5: Projevy nehomogenosti vzorku v absorpčním spektru; a) absorpční spektra při V-polarizaci a horizontální vzdálenosti mezi místy měření jednotlivých spekter $1,25 \text{ mm}$; b) polarizačně rozlišená absorbance při 20 K na různých místech na vzorku vzdálených vertikálně $1,1 \text{ mm}$.

7.2 Autodifrakce

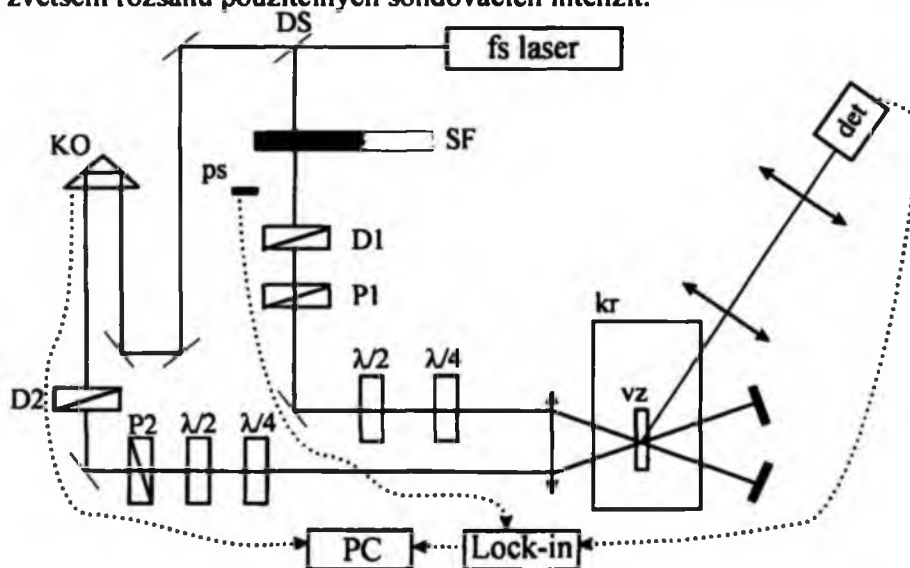
Cílem měření autodifrakce bylo určení teplotní závislosti doby orbitální koherence volných nosičů náboje. Tato závislost je nezbytná pro určení dominantního spinově-relaxačního mechanismu v CdTe [25]. Při teplotě 20 K jsme změřili mimo jiné intenzitní závislost signálu autodifrakce při naladění laserového záření do oblasti absorpce volných nosičů náboje a do oblasti excitonové absorpce.

7.2.1 Schéma experimentu

Experimentální uspořádání pro měření autodifrakce je zobrazeno na obrázku 7-6. Zdrojem laserových pulzů je femtosekundový titan safírový laser Tsunami 3960 (Spectra Physics). Laser je laditelný ve spektrálním oboru cca $720\text{-}900\text{ nm}$. Délka optických pulzů je $65\text{-}100\text{ fs}$ v závislosti na centrální vlnové délce laseru. Laser pracuje v kvazi-kontinuálním režimu s opakovací frekvencí 82 MHz . Světlo je po výstupu z laseru vertikálně polarizované. Na děliči svazku se svazek rozdělí, přičemž oba takto vzniklé pulzy lze vůči sobě vzájemně zpožďovat.

Pro jednoduchost popisu budeme pulzy procházející děličem svazku nazývat pulzy excitační a pulzy odrážející se na děliči svazku budou pulzy sondovací. Toto označení odpovídá intuitivnímu vysvětlení principu autodifrakce, které je podáno v teoretické části této práce a jednak odpovídá následnému označení svazků v obdobném experimentu excitace a sondování, viz dále.

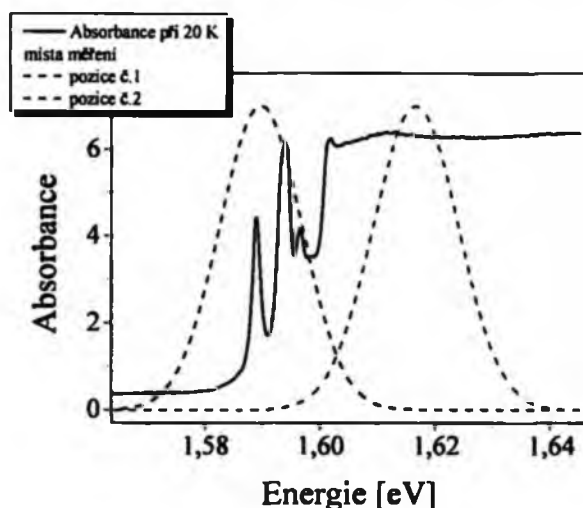
Excitační a sondovací svazek jsou vedeny přes přerušovač svazku (ps). Měření bylo prováděno na součtové frekvenci ($3,66\text{ kHz}$), přičemž frekvence přerušování excitačního svazku je 2 kHz a frekvence přerušování sondovacího svazku je $1,66\text{ kHz}$. Excitační svazek je veden na optickou zpožďovací dráhu, na které je umístěn koutový odražeč (KO). Rozsah zpožďovací dráhy je $0\text{-}4\text{ ns}$ s minimálním krokem $1/3\text{ fs}$. Fázovými destičkami D1 a D2 se mění intenzita excitačního, respektive sondovacího svazku. Pro potřeby kontroly polarizace v obou svazcích a možnosti dosažení libovolné polarizace jsou v obou ramenech vždy jedna půl vlnová a jedna čtvrt vlnová fázová destička. V sondovacím rameni je navíc zařazen šedý filtr (SF) pro zvětšení rozsahu použitelných sondovacích intenzit.



Obrázek 7-6: Experimentální uspořádání pro měření autodifrakce. Zkratky: DS...dělič svazku, KO...koutový odražeč, SF...šedý filtr, ps...přerušovač svazku, D1, D2...fázové destičky, P1, P2...polarizátory, $\lambda/2$, $\lambda/4$...půl vlnová, resp. čtvrt vlnová fázová destička, kr...kryostat, vz...vzorek, det...detektor.

Oba rovnoběžné svazky, sondovací i excitační, jsou následně vedeny čočkou o optické mohutnosti $+10 D$ do jednoho místa na vzorku. Měření bylo prováděno převážně $3,5 \text{ mm}$ před ohniskem čočky⁶, kde byl průměr laserových svazků $d_{FWHM}=300 \mu\text{m}$. Detektorem je křemíková dioda připojená přes předzesilovač do fázově citlivého analyzátoru Lock-in SR830 DSP. Princip detekce signálu pomocí fázově citlivého analyzátoru (lock-inu) je detailně rozebrán v příloze na konci této práce.

Měření autodifrakce při 20 K bylo provedeno ve dvou spektrálních oblastech. Při měření doby orbitální koherence excitonů byl laser naladěn na centrální vlnovou délku odpovídající energii fotonů $1,59 \text{ eV}$ a při měření doby orbitální koherence volných nosičů byla centrální energie fotonů $1,62 \text{ eV}$. Naladění laseru ve dvou výše uvedených spektrálních oblastech je znázorněno vzhledem k absorpčnímu spektru při 20 K na obrázku 7-7. Centrální energie fotonů při měření v oblasti excitonové absorpce byla volena tak, aby byly buzeny veškeré excitony, ale zároveň se do měření neprojevovaly stavy s energií nad hranou zakázaného pásu. Stejně tak energie fotonů pro měření doby orbitální koherence volných nosičů byla optimalizována tak, aby se v měření neprojevovaly vlastnosti excitonů, ale zároveň abychom nebyli příliš vysoko nad hranou zakázaného pásu. Použité laserové pulzy měly typickou délku $\tau_{FWHM}=65-100 \text{ fs}$ a byly vertikálně polarizované (s-polarizace).



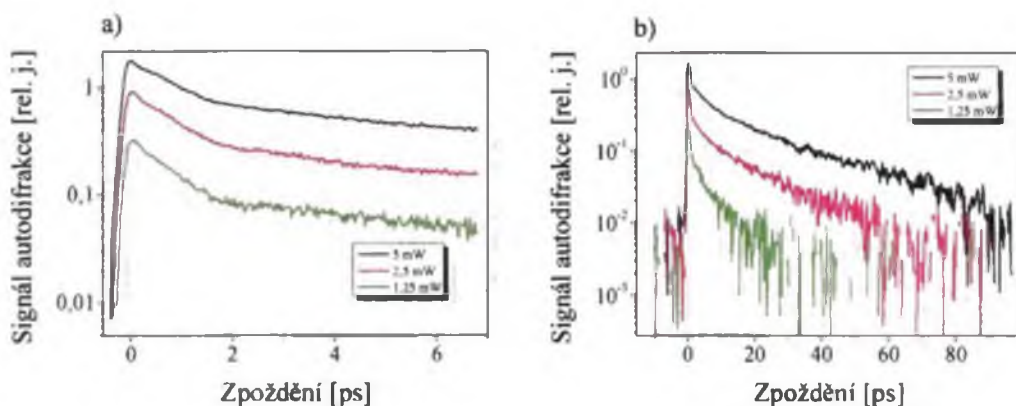
Obrázek 7-7: Absorpční spektrum při 20 K s čárkovaně zobrazenými oblastmi měření. Pozice č.1 odpovídá měření doby orbitální koherence excitonů. Pozice č.2 dopovídá měření doby orbitální koherence volných nosičů náboje.

7.2.2 Orbitální doba koherence excitonů při 20 K

Změřené dynamiky autodifrakce v oblasti excitonové absorpce jsou zobrazeny v obrázcích 7-8 a) a b). Měření bylo provedeno na krátké a) a dlouhé b) časové škále. Na krátké časové škále jsou zřejmé dva procesy doznívání orbitální koherence. Oba mechanismy se řídí zhruba exponenciálním dozníváním, kde rychlejší doznívá v časech do 2 ps a pomalejší proces trvá zhruba do 10 ps . Z obrázku 7-8 je zřejmé, že rychlejší proces je mírně intenzitně závislý.

Na dlouhé časové škále se projevují další mechanismy ztráty orbitální koherence, které jsou již mnohem více závislé na intenzitě budícího světelného pole. Tyto části dynamik autodifrakce však prozatím nebyly předmětem našeho studia.

⁶ Vzdálenost $3,5 \text{ mm}$ je měřena proti směru šíření laserového svazku od příslušného ohniska čočky.



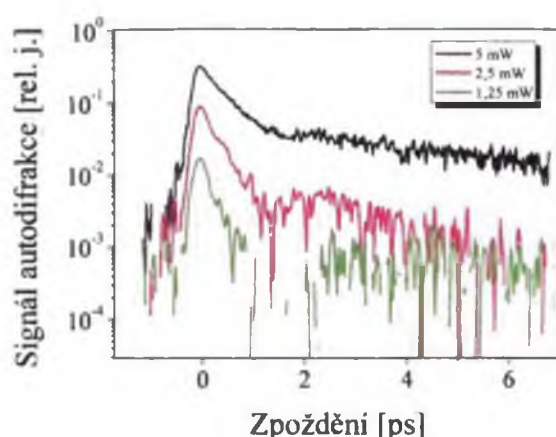
Obrázek 7-8: Intenzitní závislost autodifrakce při 20 K a energii fotonů $1,59 \text{ eV}$ na a) krátké časové škále a b) dlouhé časové škále.

7.2.3 Orbitální doba koherence volných nosičů náboje při 20 K

Před stěžejním měřením teplotní závislosti orbitální doby koherence bylo zapotřebí stanovit intenzitu svazků, při které je vhodné měřit. Ideální je minimální možná intenzita. Zde jsme ale limitováni velikostí šumu, respektive poměrem signál šum. Signál autodifrakce je totiž závislý jako třetí mocnina intenzity budícího pulzu a při snížení excitačního výkonu tudíž prudce klesá velikost difraktovaného signálu. U vysokých excitačních výkonů se zase začínají projevovat nelineární jevy.

Závislost signálu autodifrakce na budicím výkonu je znázorněna v obrázku 7-9. Z obrázku je zřejmé, že při výkonech $1,25 \text{ mW}$ a $2,5 \text{ mW}$ je rychlost doznívání koherence ihned po překryvu pulzů prakticky stejná a trend doznívání je exponenciální. Při excitaci výkonem 5 mW se již dynamika zpomaluje, tudíž tato intenzita není vhodná pro měření orbitální doby koherence.

V dynamikách doznívání koherence 1 ps po překryvu pulzů a dále se začínají projevovat další, především nelineární jevy, které ale nejsou pro určení orbitální doby koherence důležité.



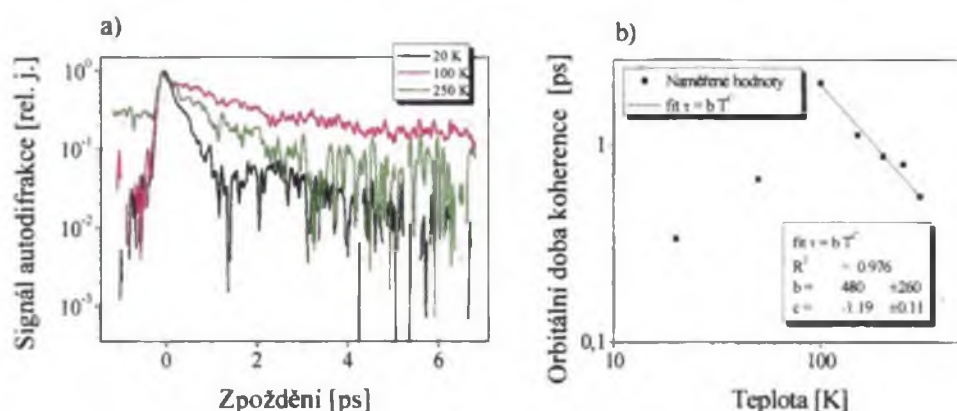
Obrázek 7-9: Intenzitní závislost autodifrakce při 20 K a energii fotonů $1,62 \text{ eV}$.

7.2.4 Teplotní závislost orbitální doby koherence volných nosičů náboje

Teplotní závislost orbitální doby koherence byla změřena v rozsahu teplot 20-300 K. Intenzita použitá v obou svazcích byla zvolena dle předchozího měření 2,5 mW. Změřené dynamiky autodifrakce pro vybrané teploty jsou zobrazeny v obrázku 7-10 a). Nafitováním těchto dynamik mono-exponenciálním dozníváním v časové oblasti ihned po překryvu pulzů byly získány doby orbitální koherence. Jejich teplotní závislost je zobrazena v obrázku 7-10 b).

Získanou teplotní závislost doby orbitální koherence lze kvalitativně interpretovat pomocí znalosti teplotní závislosti pohyblivosti nosičů náboje. Mezi orbitální dobou koherence a pohyblivostí nosičů náboje platí přímá úměrnost, přičemž konstanta úměrnosti je nezávislá na teplotě.

Ve sledovaném rozsahu teplot mají na dobu orbitální koherence vliv především dva příspěvky. Při nízkých teplotách to je rozptyl na ionizovaných příměsích a při vysokých teplotách (100-300 K) převládá rozptyl na kmitech mříže. Teplotní závislost střední doby rozptylu na kmitech mříže je dána mocninnou funkcí teploty $\tau \approx T^{-3/2}$. To velice dobře odpovídá naměřeným hodnotám. Z fitu změřené teplotní závislosti doby orbitální koherence vychází exponent v teplotní závislosti -1,2. Tato hodnota je o 0,3 menší, než teoretická hodnota odpovídající rozptylu na fononech. To je ale způsobeno faktem, že v rozptylových mechanismech se neuplatňuje pouze rozptyl na fononech, ale také další rozptylové mechanismy, které mají tendenci teoretickou hodnotu -3/2 zmenšovat.



Obrázek 7-10: Teplotní závislost autodifrakce při excitačním výkonu 2,5 mW a energii fotonů ≈ 12 meV nad šítkou zakázaného pásu při dané teplotě. Na obrázku a) jsou zobrazeny normované dynamiky signálu autodifrakce při vybraných reprezentativních teplotách a na obrázku b) jsou spočítané doby orbitální koherence v závislosti na teplotě.

7.3 Metoda Excitace a sondování

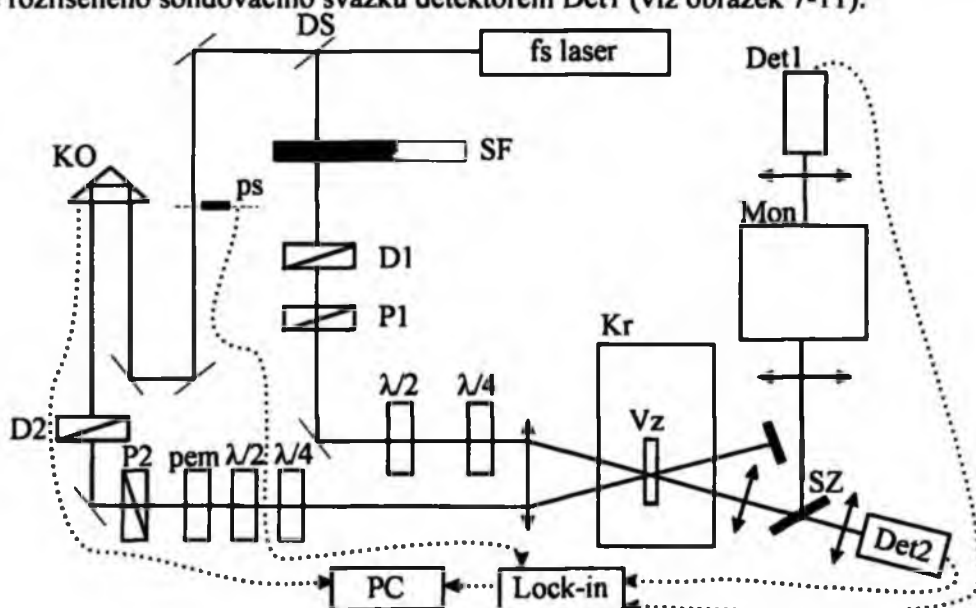
V experimentech založených na metodě excitace a sondování jsme se zabývali studiem dynamik fotoexcitovaných nosičů náboje se zaměřením na dynamiky spinové polarizace. Studovali jsme čtyři hlavní spektrální oblasti, přičemž pro jejich popis budeme v dalším textu používat energetický rozdíl mezi centrální vlnovou délkou použitých laserových pulzů a velikostí zakázaného pásu CdTe při dané teplotě. Byly to dynamiky v oblastech excitace -5 meV , $+25\text{ meV}$, $+65\text{ meV}$ a $+113\text{ meV}$ vzhledem k hraně zakázaného pásu. Měření probíhala jak při 20 K , tak za pokojové teploty a dle struktury absorpčního spektra jsme měřili buď v režimu spektrálně integrovaném nebo spektrálně rozlišeném.

7.3.1 Schéma experimentu

Schéma experimentu excitace a sondování je zobrazeno na obrázku 7-11. Jedná se o podobné experimentální uspořádání jako u měření autodifrakce (viz obrázek 7-6). Zde proto popíšeme pouze rozdíly mezi těmito dvěma experimenty. Zásadní rozdíl spočívá ve směru, ve kterém detekujeme měřený signál. Při měření excitace a sondování detekujeme přímo prošlý sondovací svazek, nikoliv difraktovaný svazek, jako tomu bylo u měření autodifrakce. Další rozdíl spočívá v poměru intenzit excitačního a sondovacího svazku. Zde je ideální volit tento poměr 10:1 (oproti autodifrakci, kde byl tento poměr 1:1).

Další rozdíly spočívají ve veličinách, které měříme. Pro stěžejní měření doby spinové koherence je potřeba mít možnost excitovat i sondovat vzorek světlem s kruhovou polarizací, a to jak pravo- tak levotočivou. Za tímto účelem jsou v obou ramenech (excitačním i sondovacím) zařazeny $\lambda/2$ a $\lambda/4$ destičky. Dále je nutné znát rozdíl signálu při excitaci vzorku světlem jedné kruhové polarizace a sondování buď světlem stejné nebo opačné kruhové polarizace. Pro tento účel je v excitačním rameni zařazen fotoelastický modulátor.

Pro možnost měření jak ve spektrálně integrovaném, tak spektrálně rozlišeném režimu, je za vzorkem zařazeno sklopné zrcátko, které umožňuje průchod světla buď přímo do detektoru (Det2) nebo odvedení detekovaného svazku do monochromátoru a poté detekci spektrálně rozlišeného sondovacího svazku detektorem Det1 (viz obrázek 7-11).



Obrázek 7-11: Experimentální uspořádání při měření metodou excitace a sondování. Zkratky: DS...dělič svazku, KO...koutový odražeč, SF...šedý filtr, ps...přerušovač svazku, D1, D2...fázové destičky, P1, P2...polarizátory, $\lambda/2$, $\lambda/4$...půlvlnová resp. čtvrtvlnová fázová destička, pem...fotoelastický modulátor, Kr...kryostat, Vz...vzorek, SZ...sklopné zrcátko, Mon...monochromátor, Det1, Det2...detektory.

Mřížka v monochromátoru byla konstruována pro viditelnou spektrální oblast a měla 1200 vrypů/mm, výstupní a vstupní štěrby byly široké ve většině měření $50\ \mu\text{m}$, což umožňovalo spektrální rozlišení $0,7\ \text{meV}$. Pouze při měření $+25\ \text{meV}$ a $+65\ \text{meV}$ nad hranou zakázaného pásu byly použity štěrby $500\ \mu\text{m}$, které poskytovaly spektrální rozlišení zhruba $7\ \text{meV}$. Průměr svazku na vzorku byl $300\ \mu\text{m}$ a délka pulzů se pohybovala v rozmezí $65\text{--}100\ \text{fs}$.

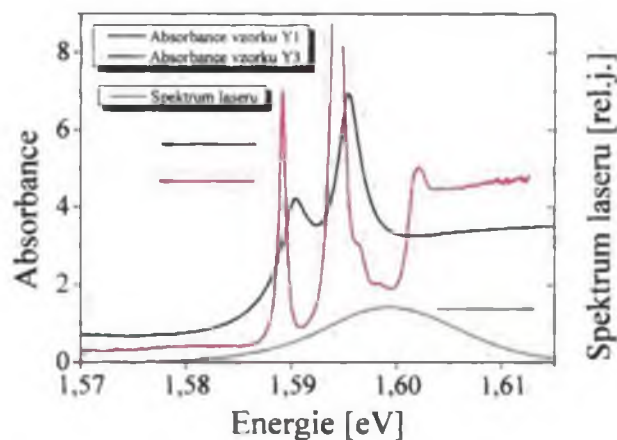
7.3.2 Měření pod hranou zakázaného pásu ($-10\ \text{meV}$)

V této spektrální oblasti jsme se zabývali studiem dynamik nosičů náboje při teplotě $20\ \text{K}$. Vzhledem ke složité excitonové struktuře absorpčního spektra (viz obrázek 7-12) bylo nutné provádět spektrálně rozlišené měření. Vedle stěžejního měření na vzorku Y3 jsme pro lepší informaci o procesech probíhajících v různých částech spektra provedli srovnávací měření na vzorku Y1.

Hlavní rozdíly mezi vzorkem Y1 a Y3 jsou zřejmé z absorpčních spekter (viz obrázek 7-12). Tato absorpční spektra byla změřena pomocí používaných spektrálně širokých laserových pulzů (viz obrázek 7-12) a popisují tedy lokální absorpci vzorku (stopa svazku o průměru $300\ \mu\text{m}$). Vyšší kvalita vzorku Y3 se projevuje v jemnější struktuře absorpčního spektra. Vzorky se liší povrchovou úpravou, přičemž vzorek Y1 je pouze leštěný z obou stran a vzorek Y3 je navíc leptaný z obou stran. Proto lze usuzovat, že vzorek Y1 má více defektů způsobených leštěním. Právě tyto defekty zapříčiní rozmazání excitonové struktury v absorpčním spektru [28].

Vzájemný posun excitonových piků ukazuje na poněkud rozdílnou teplotu obou vzorků. Skutečná teplota vzorku je dána kvalitou tepelného kontaktu vzorku na chladicím prstu kryostatu (viz kapitola 7.1.2). Rozdílná teplota obou vzorků je tedy dána rozdílnou kvalitou tepelného kontaktu mezi vzorkem a chladicím prstem kryostatu.

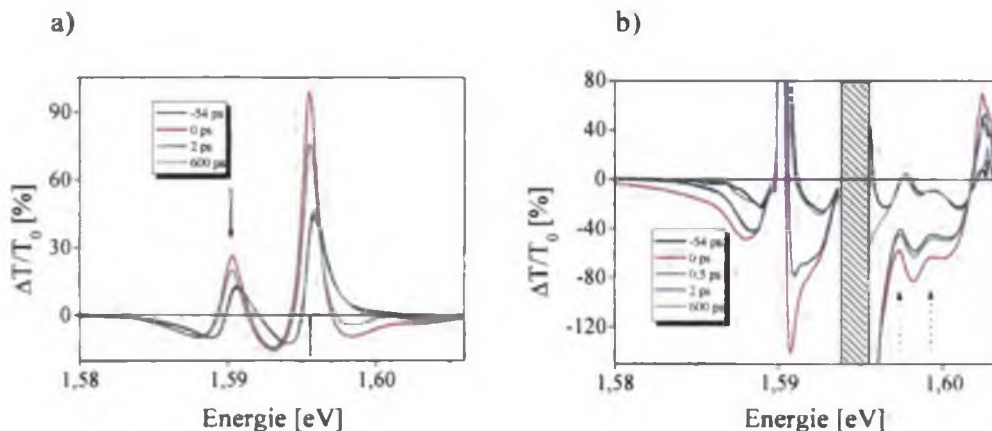
Velikost absorpance nad hranou zakázaného pásu ukazuje na rozdílnou tloušťku obou vzorků. Ze znalosti absorpčního koeficientu $\alpha = 2,35 \times 10^4\ \text{cm}^{-1}$ na energii $1,61\ \text{eV}$ a teplotě $20\ \text{K}$ [28] a velikosti absorpance pro oba vzorky (viz obrázek 7-12) lze spočítat tloušťku vzorků v místě měření. Pro vzorek Y1 vychází $d = 1,47\ \mu\text{m}$ a pro vzorek Y3 je $d = 1,98\ \mu\text{m}$.



Obrázek 7-12: Srovnání spekter absorpance vzorků Y1, Y3 a spektrálního profilu použitých laserových pulzů při měření $-10\ \text{meV}$ pod hranou zakázaného pásu při $20\ \text{K}$.

Spektrální charakteristiky dynamiky nosičů náboje

Jak již bylo zmíněno, kvůli komplikované excitonové struktuře pod hranou zakázaného pásu je nutné studovat dynamiky nosičů náboje ve spektrálně rozlišeném režimu. Pro lepší představu o procesech probíhajících v dané spektrální oblasti je vhodné provést nejdříve měření spektrálních závislostí diferenciální propustnosti. Pokud tato spektra diferenciální propustnosti změříme v různých časových zpožděních po překryvu excitačního a sondovacího pulzu, lze takto poměrně jednoduše určit charakteristické rysy dynamik v závislosti na poloze ve spektru. Tyto rysy ukazují obrázky 7-13.



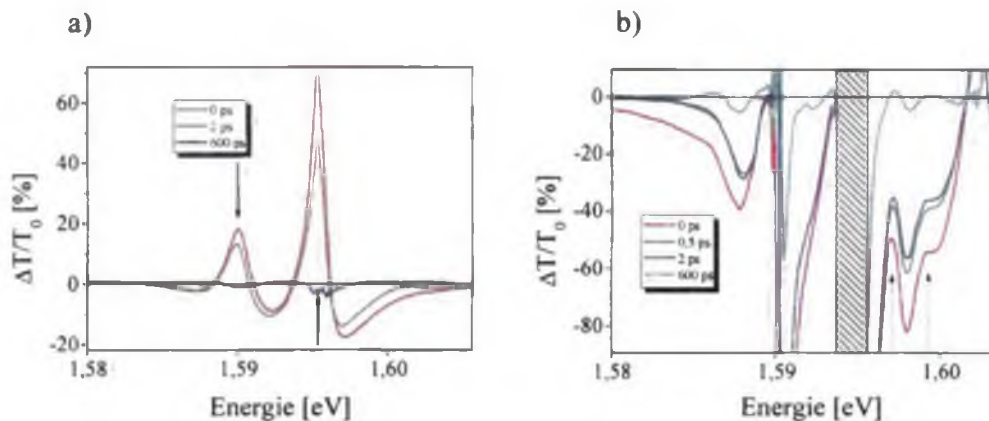
Obrázek 7-13: Spektra diferenciální propustnosti a) vzorku Y1 a b) vzorku Y3 v různých časových zpožděních po překryvu excitačního a sondovacího pulzu. Měřeno při teplotě 20 K při vertikální polarizaci obou svazků. Výkony excitačního (sondovacího) svazku při měření na vzorku Y1 byly 1,26 mW (126 μW) a při měření na vzorku Y3 2 mW (200 μW). Šípkami jsou v obrázku a) vyznačeny pozice excitonů $n=1$ a $N=1$. Ve spektru vzorku Y3 (obr. b) je hlavní excitonový absorpční pik vyznačen šrafováním, odstředěný pik se nachází na energii 1,591 eV a přerušované šípky znázorňují pozice excitonů $n=\{2, 3\}$.

V obrázku 7-13 jsou zobrazeny změřené spektrální závislosti diferenciální propustnosti v různých časových zpožděních po překryvu excitačního a sondovacího pulzu. Jak již bylo řečeno, pro měření používáme femtosekundový pulzní laser s opakovací frekvencí 82 MHz. Jinak řečeno, vzorek excitujeme a sondujeme každých zhruba 12 ns. Což ale také znamená, že spektra změřená v časovém zpoždění -54 ps odpovídají spektru 12 ns po překryvu excitačního a sondovacího pulzu. Striktně vzato tedy nelze studovat procesy pomalejší než výše uvedených 12 ns. Ze změřených spekter je ale zřejmé, že ve studovaných vzorcích jsou stále i po 12 ns nosiče náboje, které ovlivňují naše měření. Abychom tedy byli schopni pozorovat změny spekter způsobené právě jedním excitačním pulzem, je potřeba provést korekci na signál v -54 ps (resp. korekci na signál po 12 ns). Nevýhoda tohoto postupu spočívá ve faktu, že nestudujeme změny materiálových parametrů z termodynamické rovnováhy, ale studujeme změny z již excitovaného vzorku. Při opakovací frekvenci laseru 82 MHz tedy studujeme změny materiálových parametrů z kvazi-rovnovážného stavu.

Po korekci spekter na záporné zpoždění jsou již zřejmé dynamické vlastnosti spekter způsobené právě jedním excitačním pulzem (viz obrázek 7-14). Z obrázku 7-14 a) je patrné, že ve vzorku Y1 dochází vlivem absorpce silného excitačního pulzu ke značnému zvýšení transmise v oblasti excitonových hladin (znázorněných šípkami v obrázku 7-14 a)).

Přítomnost indukované absorpce (tj. záporné hodnoty diferenciální propustnosti) na obou stranách excitonových piků (viz. červená a zelená křivka v obrázku 7-13 a)) dále ukazuje, že vlivem absorpce excitačního pulsu dojde také k rozšíření příslušných excitonových absorpčních čar (viz obrázek 7-12). Pozorovaná indukovaná absorpce pro velká

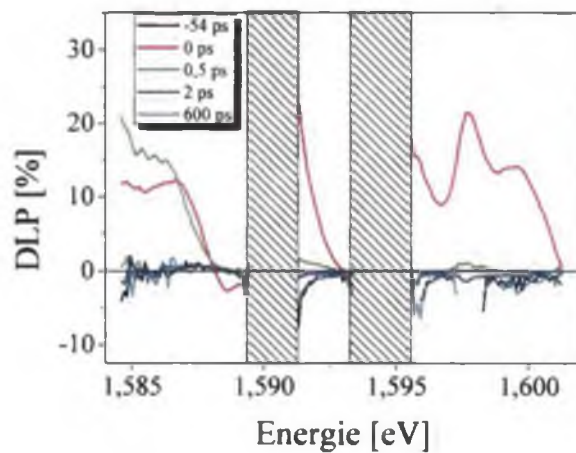
časová zpoždění (viz světle modrá křivka v obrázku 7-13 a)) je znakem toho, že dále dojde k posunu excitonových absorpčních čar do vyšších energií. Obdobná změna absorpčního spektra excitonů byla již dříve pozorována v jiných polovodičích. Snížení absorpce excitonů je vyvoláno výměnnou interakcí a obsazením dostupných energetických stavů v materiálu a modrý posun excitonové rezonance je způsoben kulombickou interakcí mezi excitony [52, 53].



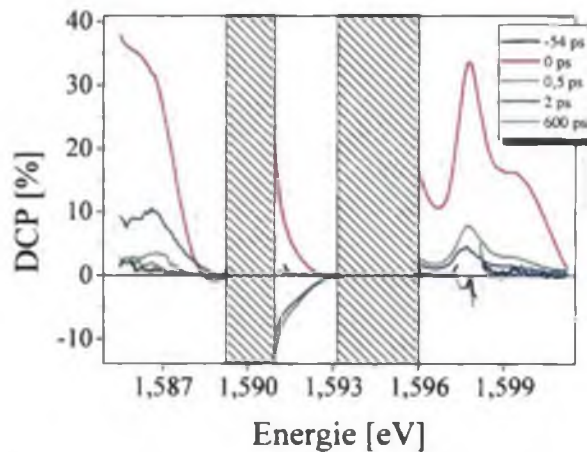
Obrázek 7-14: Spektra diferenciální propustnosti korigovaná na signál měřený pro záporné zpoždění -54 ps mezi excitačním a sondovacím pulzem pro a) vzorek Y1 a b) vzorek Y3. Měřeno při teplotě 20 K při vertikální polarizaci obou svazků. Výkony excitačního (sondovacího) svazku při měření na vzorku Y1 byly $1,26 \text{ mW}$ ($126 \mu\text{W}$) a při měření na vzorku Y3 2 mW ($200 \mu\text{W}$). Šipkami jsou v obrázku a) vyznačeny pozice excitonů $n=1$, $N=1$. Ve spektru vzorku Y3 (b) je hlavní excitonový absorpční pík vyznačen šrafováním, odstěpený pik se nachází na energii $1,591 \text{ eV}$ a přerušované šipky znázorňují pozice excitonů $n=\{2, 3\}$.

Kvalitativně stejné vlastnosti mají i spektra změřená na vzorku Y3. Rozdíl plyne z mnohem vyšší excitonové absorpce ve vzorku Y3 vlivem jeho větší tloušťky a vyšší kvality (viz obrázek 7-12). V oblasti excitonové absorpce je tedy veškeré světlo absorbováno a vzorkem vůbec neprochází (v obrázku 7-13 b) a obrázku 7-14 b) vyznačeno šrafováním). I přesto je ale patrné, že stejně jako u vzorku Y1 dochází k posunu a rozšíření excitonových absorpčních píků s $n=1$ a $N=1$. Dále je patrná saturace absorpce excitonů s $n=2$ a $n=3$ (viz přerušované šipky v obrázku 7-13 b) a obrázku 7-14 b)).

Obdobná měření jsme provedli při různých polarizacích. Pokud není v následujícím textu uvedeno jinak, jsou veškeré dále uváděné spektrální závislosti již korigované na signál měřený pro záporná zpoždění. Ze spekter změn lineární polarizace (DLP, viz obrázek 7-15) je pozorovatelná anizotropie vzorku. V časové oblasti kolem překryvu excitačního a sondovacího pulzu je ve vzorku relativně vysoká opticky indukovaná anizotropie. V jednotkách DLP činí řádově desítky procent. Již 2 ps po překryvu pulzů je ale vzorek opět opticky izotropní.



Obrázek 7-15: Spektra DLP ve vzorku Y3 v oblasti -10 meV pod hranou zakázaného pásu v různých časových zpožděních po překryvu excitačního a sondovacího pulzu. Měřeno při 20 K a výkonu v excitačním svazku 20 mW .

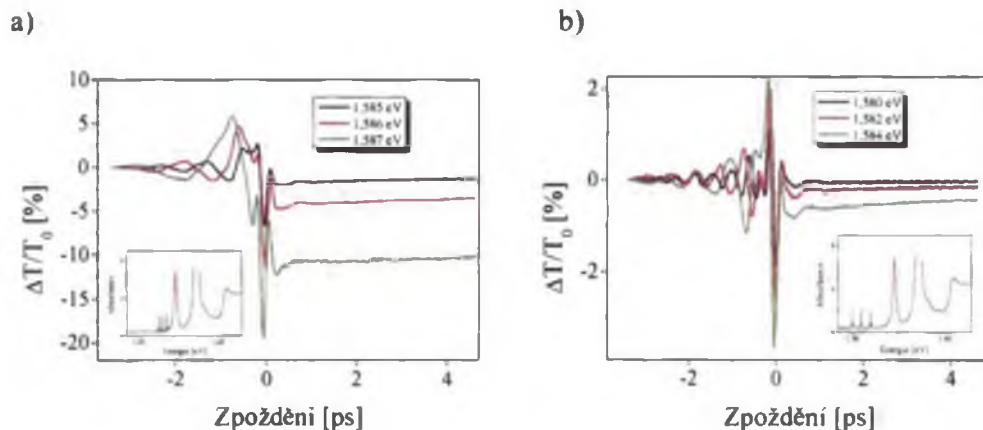


Obrázek 7-16: Spektrum diferenciální změny kruhové polarizace na vzorku Y3 při 20 K a různých časových zpožděních po překryvu excitačního a sondovacího pulzu. Výkon v excitačním svazku 2 mW .

Ze spekter stupně kruhové polarizace (viz obrázek 7-16) je patrný vývoj spinové koherence v jednotlivých spektrálních oblastech. Na vybraných energiích jsme změřili dynamiku stupně kruhové polarizace. Tato měření jsou podrobně rozebrána v následujících kapitolách.

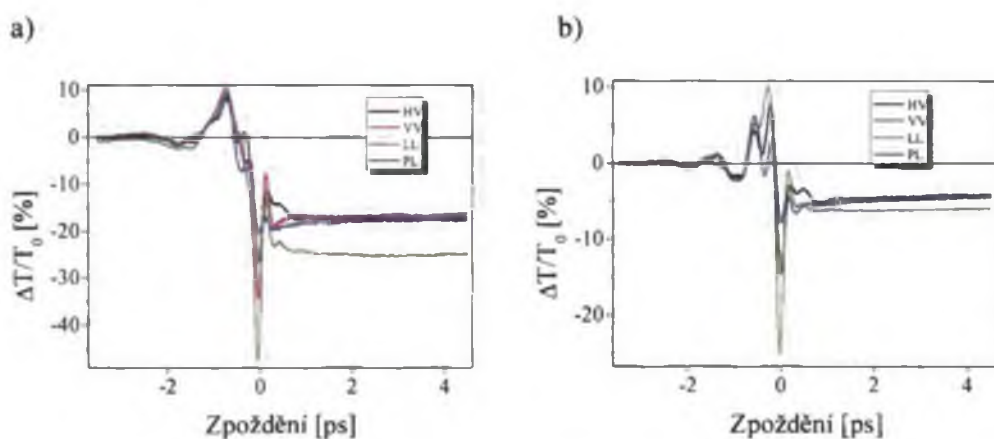
Dynamika diferenciální propustnosti pod excitonovou absorpcí

Ve spektrální oblasti pod excitonovou absorpcí jsme pozorovali silné oscilace ve změřených dynamikách $\Delta T/T_0$ pro záporná časová zpoždění. Jejich frekvence a amplituda silně závisela na spektrální poloze, na které probíhá detekce sondovacího pulzu (viz obrázek 7-17). Frekvence oscilací se s rostoucí energií snižuje. Dále je patrné, že čím menší energie, tím méně jsou oscilace tlumené.



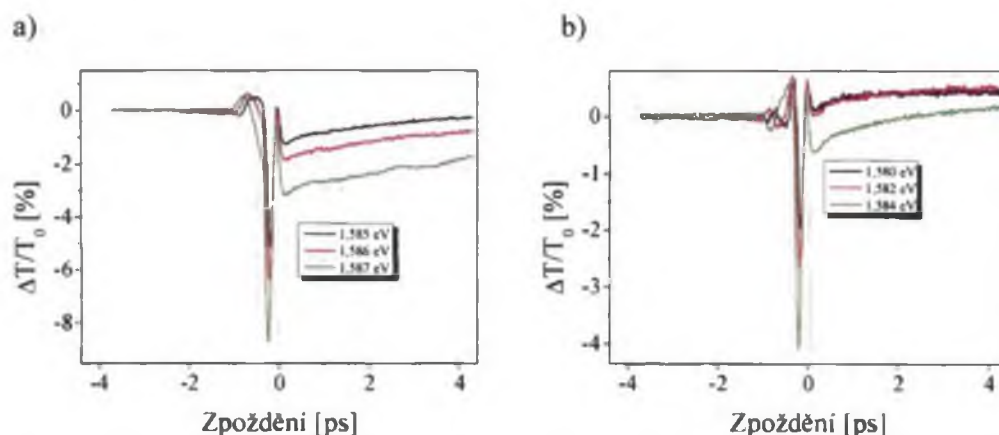
Obrázek 7-17: Dynamiky diferenciální propustnosti na vzorku Y3 v oblasti pod excitonovou absorpcí při $T=20\text{ K}$. Dynamiky jsou měřeny (a) těsně pod excitonovou absorpcí a (b) hluboko pod excitonovou absorpcí. Naladění laseru -10 meV pod hranou zakázaného pásu. Výkon v excitačním svazku $1,26\text{ mW}$ a v sondovacím $126\text{ }\mu\text{W}$. Oba svazky byly vertikálně polarizované. Vložené obrázky ukazují spektrální pozici detekovaného záření vzhledem k absorpčnímu spektru.

Při polarizační charakterizaci dynamik před překryvem excitačního a sondovacího pulzu jsme zjistili, že tyto dynamiky jsou polarizačně nezávislé (viz obrázek 7-18). Naopak dynamiky v oblasti překryvu silně závisí na polarizaci. V časové oblasti po excitaci vzorku se zhruba po 1 ps přestávají lišit dynamiky pro různě lineárně polarizované laserové pulzy. Ke stejnému závěru jsme došli i při studiu spekter stupně lineární polarizace v různých časových zpožděních (viz DLP, obrázek 7-15). V časech delších než 1 ps po excitaci se tedy dynamiky liší již pouze v kruhových polarizacích. To znamená, že ve vzorku jsme vybudili spinovou nerovnováhu. V této spektrální oblasti však nebylo naším hlavním cílem měření dynamik spinové koherence. Zde jsme se zabývali nenulovými změnami diferenciální propustnosti před příchodem excitačního pulzu do vzorku.



Obrázek 7-18: Polarizační závislost dynamik diferenciální propustnosti při detekci spektrálně rozlišeného sondování na a) $1,587\text{ eV}$ a b) $1,586\text{ eV}$. Polarizace horizontální (H), vertikální (V), kruhová levotočivá (L) a pravotočivá (P). První písmeno v popisku grafu značí polarizaci excitačního svazku, druhé písmeno polarizaci sondování. Měřeno při 20 K s laserem naladěným na centrální energii fotonů $1,599\text{ eV}$. Výkon v excitačním (sondovacím) svazku byl při měření na $1,586\text{ eV}$ 2 mW ($200\text{ }\mu\text{W}$) a při měření na $1,587\text{ eV}$ $1,26\text{ mW}$ ($126\text{ }\mu\text{W}$).

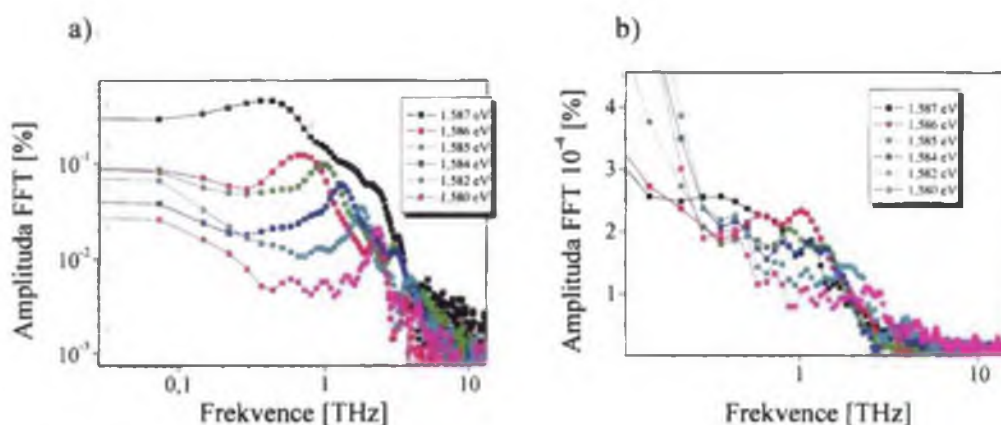
Pro získání více informací jsme provedli srovnávací měření na vzorku Y1 (viz obrázek 7-19). Jak již bylo zmíněno, tento vzorek je jednak méně kvalitní a jednak má rozdílnou tloušťku oproti vzorku Y3. Méně kvalitní povrchová úprava vzorku Y1 se pravděpodobně projevuje v horší kvalitě oscilací a jejich rychlejším tlumení.



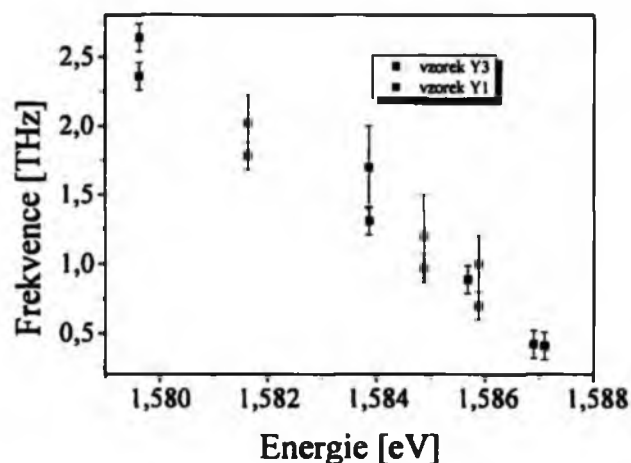
Obrázek 7-19: Dynamiky diferenciální propustnosti na vzorku Y1 v oblasti pod excitonovou absorpcí při $T=20\text{ K}$. Dynamiky jsou měřeny (a) těsně pod excitonovou absorpcí a (b) hluboko pod excitonovou absorpcí. Naladění laseru -10 meV pod hranou zakázaného pásu. Výkon v excitačním svazku $1,26\text{ mW}$ a v sondovacím $126\text{ }\mu\text{W}$. Oba svazky byly vertikálně polarizované.

Pomocí Fourierovy transformace v časové oblasti před překryvem pulzů jsme určili kvantitativně závislost frekvence oscilací na energii (viz obrázek 7-20). Ve frekvenční oblasti jsou u vzorku Y3 charakteristické frekvence oscilací velmi dobře zřetelné. To již neplatí u vzorku Y1. Charakteristické frekvence jsou zde také patrné, ale poměrně hůře než u kvalitnějšího vzorku Y3. To se projeví v chybě určení příslušných hodnot frekvencí.

Vynesením závislosti frekvencí na energii a srovnáním těchto závislostí pro oba vzorky jsme potvrdili již provedené kvalitativní odhady charakteru oscilací (viz obrázek 7-21). Jednak frekvence oscilací se snižuje se zvyšující se energií fotonů. Dalším rysem je, že frekvence oscilací je při dané energii rozdílná u obou vzorků, nicméně závislost na energii zůstává u obou vzorků stejná.

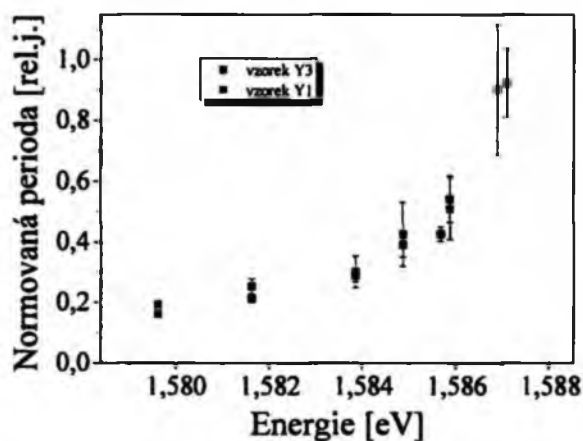


Obrázek 7-20: Fourierovy transformace dynamik $\Delta T/T_0$ měřených na vzorku a) Y3 a b) Y1 v časové oblasti před překryvem excitačního a sondovacího pulzu.



Obrázek 7-21: Spektrální závislost charakteristických frekvencí v dynamikách $\Delta T/T_0$ pro vzorek Y1 a Y3. Data jsou doplněna o měření testující reprodukovatelnost.

Při vynásobení frekvencí příslušnou tloušťkou vzorku, resp. normováním periody oscilací na tloušťku vzorku získáme závislost uvedenou v obrázku 7-22. Zde je zobrazena normovaná perioda $1/fd$ (f ...frekvence, d ...tloušťka vzorku), poněvadž zde je lépe vidět, že perioda oscilací úzce souvisí s tloušťkou vzorku.



Obrázek 7-22: Normovaná perioda oscilací před překryvem excitačního a sondovacího pulzu.

Obdobné oscilace mohou být způsobeny velkým množstvím fyzikálních jevů. Z výše uvedených měření však již nyní lze některé vyloučit. Především lze jako příčinu těchto oscilací vyloučit generaci koherentních fononů, kde je závislost frekvence oscilací na energii konstantní. Pozorovaná polarizační nezávislost (viz obrázek 7-18) a závislost oscilací na tloušťce vzorku (viz obrázek 7-21) ukazují, že se nejedná o koherentní materiálovou odezvu. Obrázek 7-22 naopak ukazuje, že by se mohlo jednat o efekty šíření ve vzorku, a to díky škálování oscilací s tloušťkou vzorku.

Jedna z možných interpretací těchto oscilací, kterou je však nutné prověřit dalšími experimenty, je následující. V časové oblasti před překryvem excitačního a sondovacího pulzu je ve vzorku dříve sondovací pulz. Protože jsme energeticky pod excitonovými absorpčními piky, sondovací pulz se ve vzorku velmi málo tlumí. Nicméně v blízkosti obou povrchů vzorku je pásová struktura materiálu zakřivena směrem dolů, a tudíž zde dochází k silnější absorpci. Proto se na obou površích, jak předním tak zadním (vzhledem ke směru

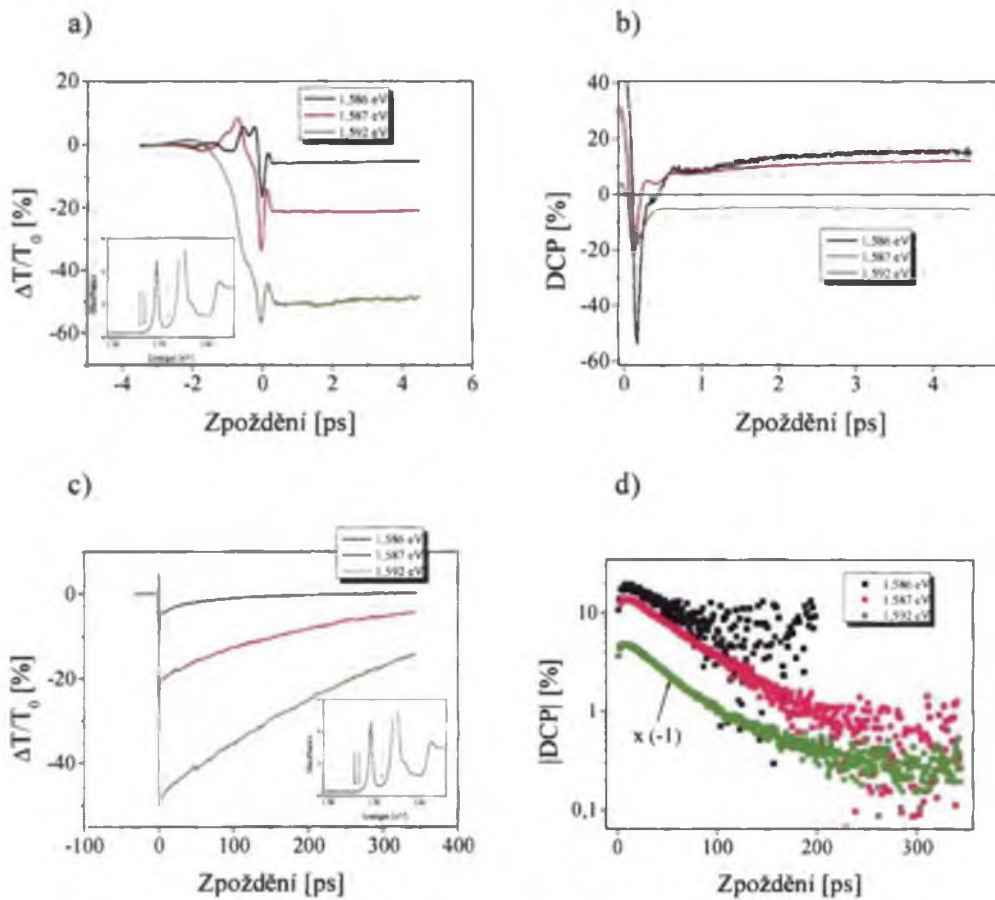
šíření sondovacího a excitačního svazku) vytvoří elektron-děrové plazma. To vede na povrchu vzorku k prudkému zvýšení reflektivity. Pro sondovací pulz to znamená, že se tím pádem nemůže dostat ven ze vzorku, ale neustále se odráží od vnitřních stěn vzorku. Díky malé absorpci se takto může pohybovat i relativně dlouho (řádově jednotky pikosekund). Jeho šíření je dále ovlivněno tím, že v této spektrální oblasti dochází ke značné změně absorpce, což vede k vysokým hodnotám grupového indexu lomu [54]. Poté, co do vzorku dorazí silný excitační pulz, dojde ke snížení reflektivity, což způsobí, že sondovací pulz se již neodráží od stěn, ale prochází jimi. V případě, že se v danou chvíli sondovací pulz pohybuje v původním směru šíření, vidíme v dynamice $\Delta T/T_0$ maximum. V případě, že se pohybuje opačným směrem, pak v dynamice diferenciální propustnosti vidíme minimum.

Jeden z možných důvodů, proč při příchodu excitačního pulzu dojde k poklesu reflektivity je následující. Vzhledem k tomu, že excitační pulz je dostatečně intenzivní, dojde k renormalizaci šířky zakázaného pásu. To znamená, že hrana zakázaného pásu se posune k nižším energiím. Z tohoto důvodu se začnou absorbovat fotony, které se při absenci excitačního pulzu neabsorbovali. Neboli excitační pulz vytvoří elektron-děrové plazma v celém objemu vzorku. Z tohoto důvodu klesne kontrast fázových indexů lomu uvnitř vzorku a na jeho povrchu a následně se sníží reflektivita.

Věrohodnost tohoto modelu je ale zcela nezbytně nutné ověřit dalšími experimenty. Zejména je potřeba změřit intenzitní závislosti oscilací a měření provést současně v transmisní a reflexní geometrii. Při detekci signálu na odraz bychom totiž měli vidět dynamiku oscilací posunutou fázově o π vzhledem k dynamikám měřeným v transmisní geometrii.

Dynamiky nosičů náboje v blízkém okolí excitonové absorpce

Dále jsme se zabývali studiem dozívání spinové koherence v oblasti těsně kolem excitonových absorpčních píkú (viz obrázek 7-23). Zde jsme zjistili, že doba dozívání spinové polarizace v CdTe prakticky nezávisí na poloze ve spektru. To je zřejmé z obrázku 7-23 d), kde jsou v logaritmické škále směrnice všech tří dynamik zhruba rovnoběžné. Kvantitativně tyto poklesy odpovídají na energiích $1,586\text{ eV}$, $1,587\text{ eV}$ a $1,592\text{ eV}$ postupně dobám dozívání spinové polarizace $\tau_1=(66\pm 6)\text{ ps}$, $\tau_2=(67\pm 5)\text{ ps}$ a $\tau_3=(57\pm 5)\text{ ps}$, což jsou v rámci chyby měření stejné hodnoty.



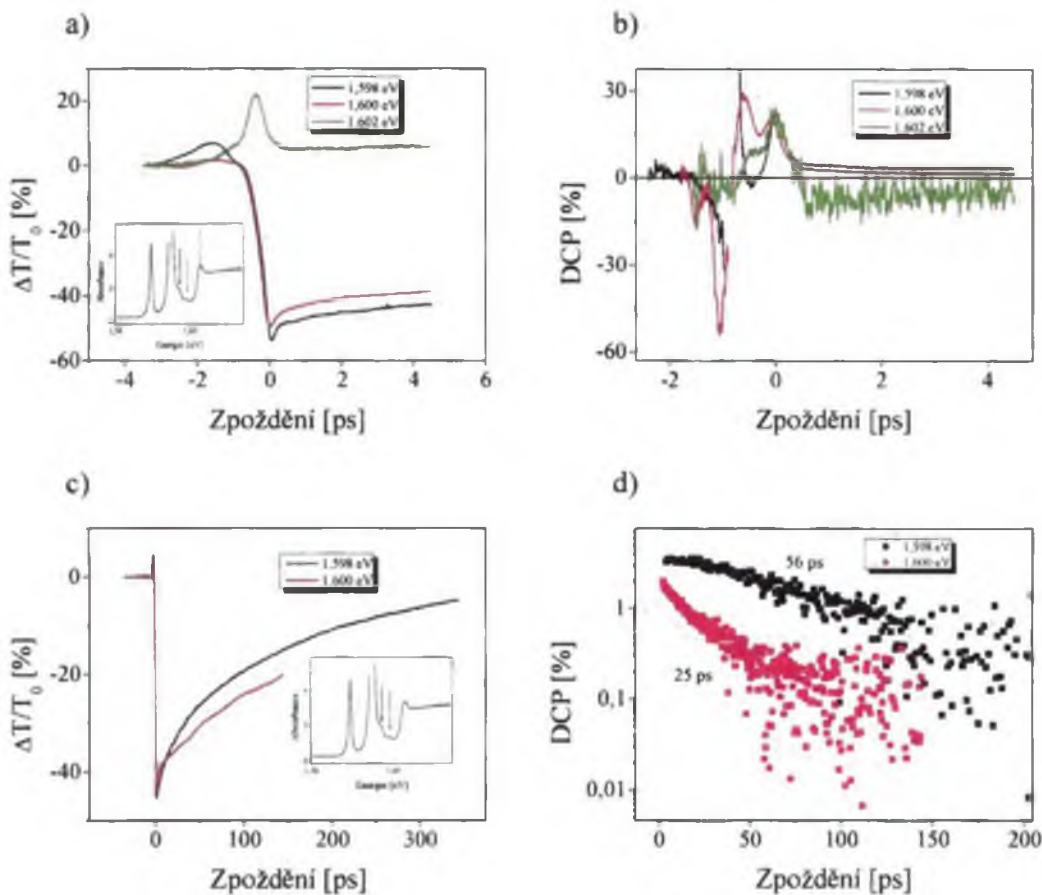
Obrázek 7-23: Diferenciální změny propustnosti (a, c) a příslušné stupně kruhové polarizace (b, d) na vzorku Y3. Měřeno pod a mezi excitony při 20 K na krátké (a, b) a dlouhé (c, d) časové škále po překryvu pulzů. Ve vložených grafech jsou schematicky naznačena spektra absorpance s vyznačením pozic ve spektru, na kterých docházelo k detekci spektrálně rozlišených sondovacích pulzů. Výkon v excitačním svazku 2 mW , výkon v sondovacím svazku $200\text{ }\mu\text{W}$, průměr stopy svazku $300\text{ }\mu\text{m}$. V obrázku d) je křivka pro $1,592\text{ eV}$ vynásobena pro srovnání faktorem -1 .

Dynamiky nosičů náboje v excitonové absorpci

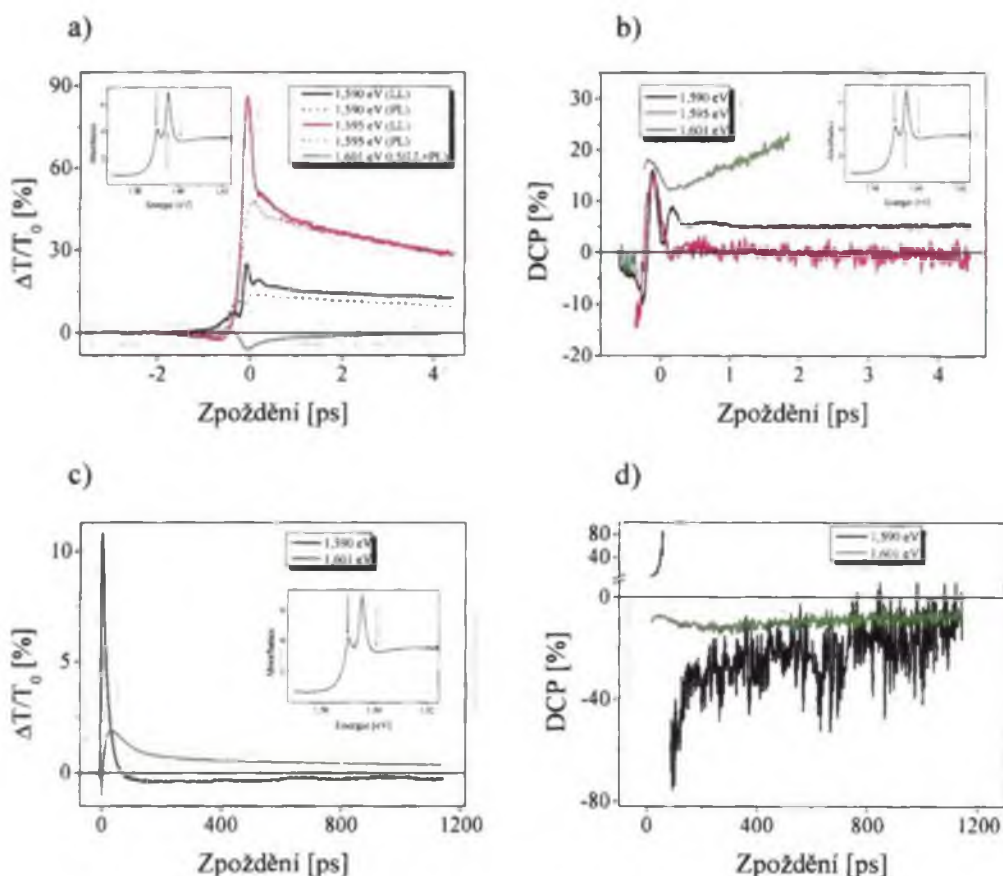
Na vzorku Y3 bylo měření dynamik dozrívání spinové polarizace excitonů znemožněno příliš vysokou absorpcí. Proto jsme se snažili určit tuto dobu měřením na satelitech excitonů. Tedy měřením dynamik na excitonech s kvantovými čísly $n=\{2,3\}$ a $N=2$. Konkrétně je v absorpčním spektru rozpoznatelný satelit s kvantovým číslem $N=2$ příslušející hlavnímu excitonovému píku (viz obrázek 7-2). Dále jsou zřetelné excitonové piky s kvantovým číslem $n=2$ a méně zřetelný pik s kvantovým číslem $n=3$, které přísluší odštěpenému excitonovému píku.

Změřením příslušných dynamik jsme dospěli k závěru, že doba dozrívání spinové koherence závisí na poloze ve spektru. Tedy záleží na tom, na jakém excitonovém satelitu příslušnou dynamiku studujeme (viz obrázek 7-24). Na satelitu s $n=2$ od odštěpeného excitonu je doba dozrívání spinové koherence zhruba 56 ps , což se dobře shoduje s příslušnou dobou určenou při měření v blízkém okolí excitonové absorpce. Naopak na satelitu s $n=3$ příslušejícího k téměř excitonu je tato doba již pouze 25 ps . Měření na satelitu s $N=2$ patřícího k hlavnímu excitonovému píku bylo kvůli špatnému poměru signál/šum prakticky neproveditelné.

Pro srovnání dynamik dozrívání spinové koherence na excitonech a jejich satelitech jsme obdobné měření provedli i na vzorku Y1 (viz obrázek 7-25).



Obrázek 7-24: Diferenciální změny propustnosti (a, c) a příslušné stupně kruhové polarizace (b, d) na vzorku Y3. Měřeno na satelitech excitonů ($N=2$, $n=\{2, 3\}$) při 20 K na krátké (a, b) a dlouhé (c, d) časové škále po překryvu pulzů. Ve vložených grafech jsou schematicky naznačena spektra absorpce s vyznačením pozic ve spektru, na kterých docházelo k detekci spektrálně rozlišených sondovacích pulzů. Výkon v excitačním svazku $1,26\text{ mW}$, výkon v sondovacím svazku $126\text{ }\mu\text{W}$.



Obrázek 7-25: Diferenciální změny propustnosti (a, c) a příslušné stupně kruhové polarizace (b, d) na vzorku Y1. Měřeno v oblasti excitonové absorpce při 20 K na krátké (a, b) a dlouhé (c, d) časové škále po překryvu pulzů. Ve vložených grafech jsou schematicky naznačena spektra absorpce s vyznačením pozic ve spektru, na kterých docházelo k detekci spektrálně rozlišených sondovacích pulzů. Výkon v excitačním svazku 1,26 mW, výkon v sondovacím svazku 126 μW, průměr stopy svazku 300 μm (FWHM).

Ukázalo se, že měření dynamik dozívání spinové polarizace je na vzorku Y1 realizovatelné pouze na odštěpeném excitonovém píku. Ve vzorku Y1 není zřetelný žádný exciton s kvantovým číslem vyšším než 1. Přesto jsme se pokusili provést měření v oblasti, kde jsme předpokládali odštěpený exciton s $n=2$. Na hlavním excitonu je sice měření možné, ale spinová polarizace zde vymizí prakticky ihned po odeznění excitačního pulzu (viz obrázek 7-25 b).

Na samotném odštěpeném excitonu (1,590 eV) jsme změřili dobu dozívání spinové polarizace $\tau_s = (37 \pm 6)$ ps. Při měření v oblasti předpokládaného excitonu s $n=2$ (viz obrázek 7-25, 1,601 eV, zelená křivka) jsme zjistili, že interpretace naměřených dat je poněkud komplikovanější. Již signál diferenciální propustnosti má velice dlouhý náběh, který činí zhruba 30 ps po excitaci vzorku. Interpretace těchto dat bude proto předmětem následného výzkumu. Pro objasnění oscilací diferenciální propustnosti a spinové polarizace na odštěpeném excitonu s $n=1$ (viz obrázek 7-25 a) b)) bude také zapotřebí provést další experimenty.

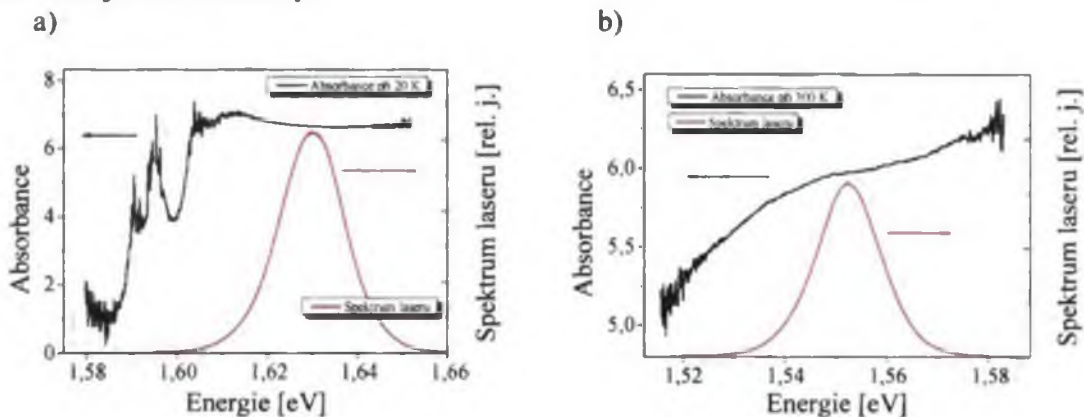
Dále jsou ve výše uvedených dynamikách zajímavé oscilace diferenciální propustnosti v oblasti časové nuly, tedy v časech, kdy dochází k překryvu excitačního a sondovacího pulzu. Tyto oscilace se nachází pouze ve spektrálních oblastech pod odštěpeným excitonovým absorpčním píkem s $n=1$ a mezi excitony s $n=1$ a $N=1$ (viz obrázek 7-23 a). Tyto oscilace se naopak nikdy nevyskytují ve spektrální oblasti s energiemi vyššími než energie hlavního excitonového píku $N=1$ (viz obrázek 7-24). Tyto oscilace jsou silně polarizačně závislé (viz

obrázek 7-18). Z této polarizační závislosti usuzujeme, že se pravděpodobně jedná o koherentní materiálovou odezvu na koherentní světelné pole. Krátká perioda těchto oscilací vylučuje kvantové rázy mezi excitony, jejichž minimální perioda by v našem vzorku byla $0,6 \text{ ps}$. Přesný původ těchto oscilací není doposud zřejmý a pro jejich objasnění bude nutné provést další experimenty.

Závěrem lze konstatovat, že ve vzorku Y3 jsme naměřili ve spektrálních oblastech kolem excitonové absorpce dobu spinové koherence 60 ps . Toto se netýká oblasti těsně pod hranou zakázaného pásu, kde byla doba spinové koherence 25 ps . Ve vzorku Y1 jsme změřili dobu spinové koherence odštěpeného excitonu ($n=1$) zhruba 40 ps .

7.3.3 Měření na hraně zakázaného pásu ($+25 \text{ meV}$)

Po prostudování dob spinové koherence excitonů jsme se snažili určit dobu dozívání spinové koherence volných nosičů náboje při teze teplotě, tedy při 20 K . Měření jsme provedli při excitaci $+25 \text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu. Spektrum absorpce (viz obrázek 7-26 a) zobrazuje zároveň oblast, kde docházelo k excitaci. Neboť jsme byli naladěni těsně nad hranou zakázaného pásu, je z obrázku 7-26 patrné, že jsme při 20 K neexcitovali jen volné nosiče náboje, ale i excitony.

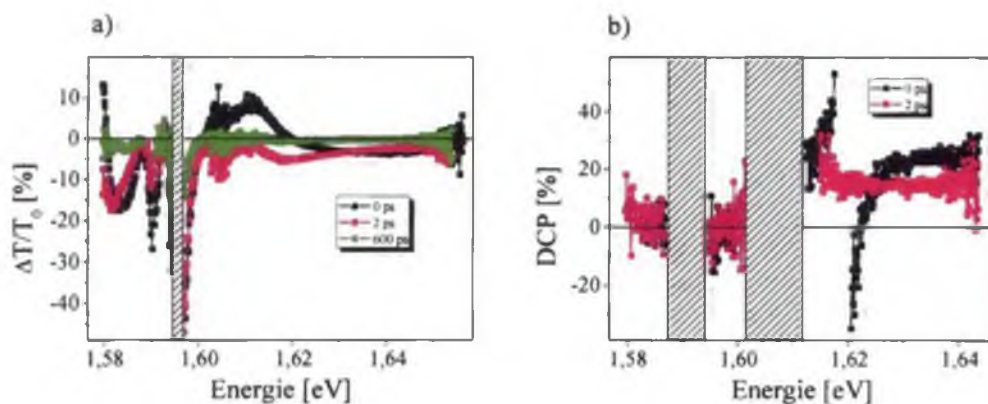


Obrázek 7-26: Spektrum absorpce při a) 20 K a b) 300 K změněné pomocí femtosekundových laserových pulzů. Obrázky jsou doplněny spektrálními profily použitých laserových pulzů při měření $+25 \text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu.

Studium dynamik nosičů náboje při 20 K

Nejdříve jsme opět pro lepší porozumění studované problematice změřili spektrální závislosti diferenciální propustnosti a stupně kruhové polarizace v různých časech po excitaci vzorku (viz obrázek 7-27). Ze změřených spekter je zřejmé, že dynamiky jak diferenciální propustnosti tak spinové polarizace jsou zde velice komplikované. To především z důvodu, že do měřeného signálu přispívají dva neoddelitelné příspěvky. Jsou to saturace absorpce a indukovaná absorpce. Pro korektní určení dozívání spinové polarizace je však zapotřebí v nejlepší případě buď saturace absorpce nebo při opatrné diskuzi výsledků pouze indukovaná absorpce. V této spektrální oblasti se ale při 20 K projevují oba příspěvky a určení dozívání spinové polarizace je proto komplikované.

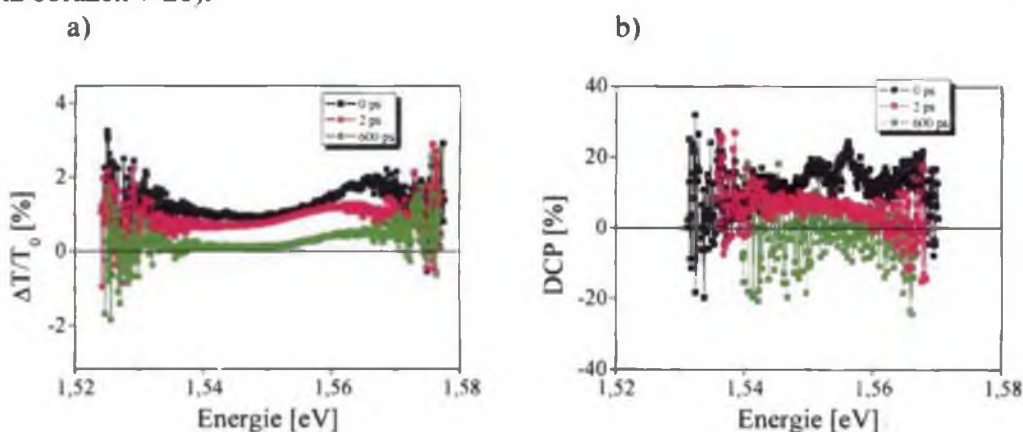
Tuto dobu je však možné změřit i výše nad hranou zakázaného pásu (viz kap. 7.3.4). Taková měření dávají v materiálech jako je CdTe nebo GaAs správné hodnoty doby dozívání spinové polarizace volných nosičů náboje [55]. V této spektrální oblasti jsme proto příslušnou dobu spinové koherence změřili pouze při 300 K , kde se projevuje pouze saturace absorpce.



Obrázek 7-27: Spektra a) diferenciální propustnosti a b) stupně kruhové polarizace při 20 K v různých časových zpožděních po překryvu pulzů. Šrafováním je v obrázku a) znázorněn hlavní excitonový absorpční pik $N=1$. V obrázku b) přísluší vyšrafovaným oblastem oba excitonové absorpční píky (oblast v okolí 1,590 eV) a navíc hrana zakázaného pásu (oblast od 1,602 eV do 1,612 eV).

Studium dynamik nosičů náboje při 300 K

Při 300 K jsou ve vzorku excitony již tepelně disociované a absorpční spektrum je ve studované oblasti hladké, bez významnějších jemných struktur (viz obrázek 7-26 b). Spektrální nezávislost dynamik nosičů náboje jsme taktéž ověřili změřením spekter diferenciální propustnosti a stupně kruhové polarizace v různých časech po excitaci vzorku (viz obrázek 7-28).



Obrázek 7-28: Spektra a) diferenciální propustnosti a b) stupně kruhové polarizace při 300 K v různých časových zpožděních po překryvu pulzů. Výkon excitačního (sondovacího) svazku byl 20 mW (2 mW).

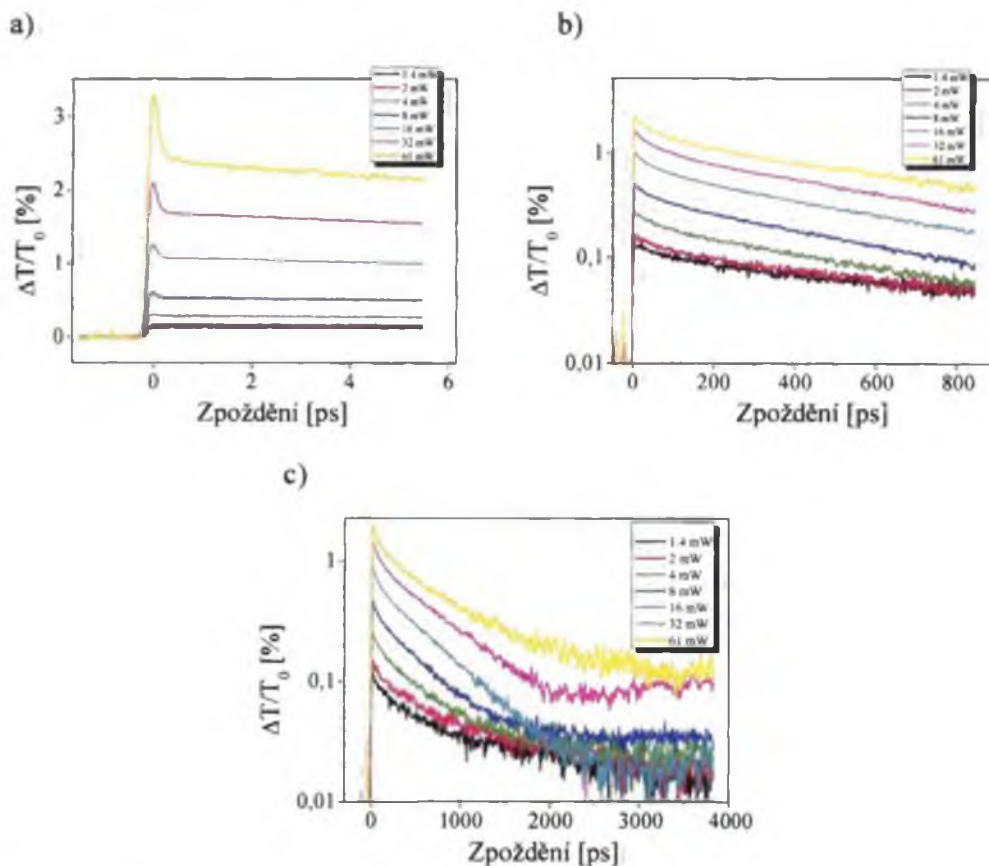
Z naměřených spekter je zřejmé, že není potřeba měření provádět ve spektrálně rozlišeném režimu. Pro studium dynamik v oblasti +25 meV nad hranou zakázaného pásu je tedy při teplotě 300 K dostačující měření, kde je signál měřený sondovacím svazkem spektrálně integrován.

Měření spinově nezávislé dynamiky volných nosičů náboje

Před samotným měřením bylo zapotřebí ověřit správné nastavení velikosti výkonu excitačního a sondovacího svazku. Pro lepší poměr signál šum je vhodné měřit při dostatečně

vysokých intenzitách excitačního svazku. Tyto intenzity však nesmí být příliš vysoké, aby se nezačala projevovat nelineární závislost diferenciální propustnosti na koncentraci nosičů, resp. na excitační výkonu (viz kapitola 5.3). Navíc se při aplikaci příliš velkých excitačních výkonů opět začíná zhoršovat poměr signál/šum, stejně jako u příliš nízkých intenzit. Právě nalezení optimálního excitačního výkonu byla jedna z motivací následného měření intenzitní závislosti doznívání diferenciální propustnosti (viz obrázek 7-29).

Další motivací byla skutečnost, že vzhledem k relativně jednoduché struktuře hrany zakázaného pásu je možné naměřené dynamiky popsat alespoň v první aproximaci pomocí kinetických rovnic. Model kinetických rovnic popisující změřené intenzitní závislosti na různých časových škálách po excitaci vzorku je podrobně řešen v kapitole 8.



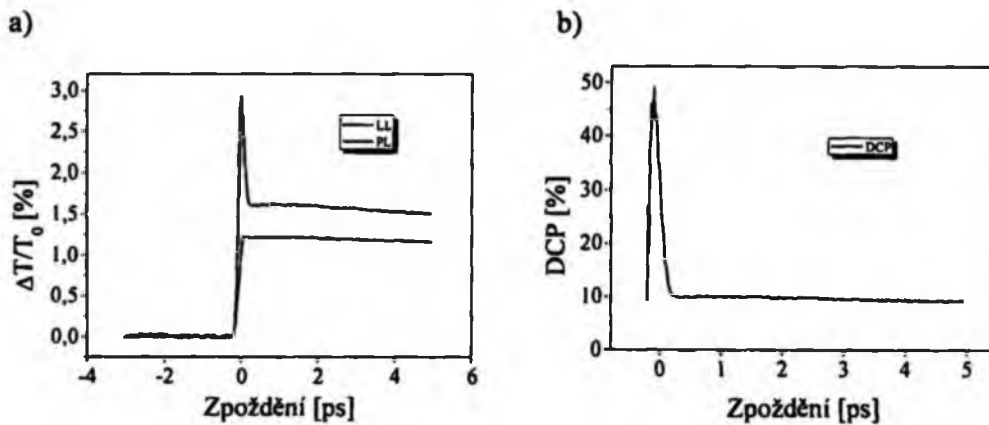
Obrázek 7-29: Intenzitní závislost dynamiky diferenciální propustnosti na a) krátké, b) střední a c) dlouhé časové škále po překryvu excitačního a sondovacího pulzu. Měřeno při 300 K, centrální energii fotonů excitačního svazku $+25 \text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu a horizontální polarizací excitačního svazku. Sondovací svazek o intenzitě $140 \mu\text{W}$ a vertikální polarizací byl spektrálně integrován.

Změřením intenzitních závislostí na různých časových škálách po excitaci vzorku jsme určili jako optimální výkon excitace 20 mW . Tato intenzita excitace byla také použita pro výše uvedené měření spekter diferenciální propustnosti a stupně kruhové polarizace.

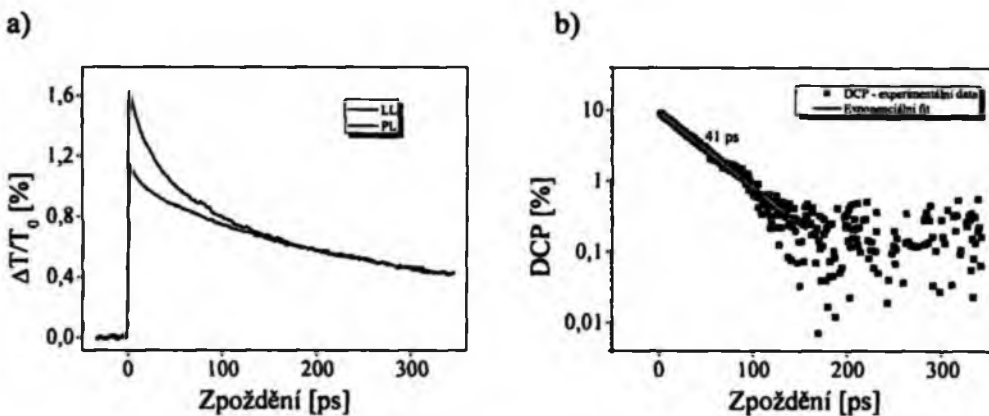
Dynamiky spinové koherence

V dynamikách doznívání spinové polarizace na krátké časové škále řádu jednotek pikosekund po excitaci vzorku jsme nenašli žádné zvláštní charakteristiky (viz obrázek 7-30). Na dlouhé časové škále řádu stovek pikosekund po excitaci vzorku je zřejmé mono-exponenciální doznívání spinové polarizace přes dva řády velikosti DCP (viz obrázek 7-31).

Doba dozívání spinové polarizace je tedy při 300 K v oblasti $+25\text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu $(41 \pm 1)\text{ ps}$.



Obrázek 7-30: Dynamika a) diferenciální změny propustnosti a b) stupně kruhové polarizace při 300 K pro malá časová zpoždění. Spektrálně integrovaná měření $+25\text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu. Výkon excitačního (sondovacího) svazku byl 20 mW (2 mW).

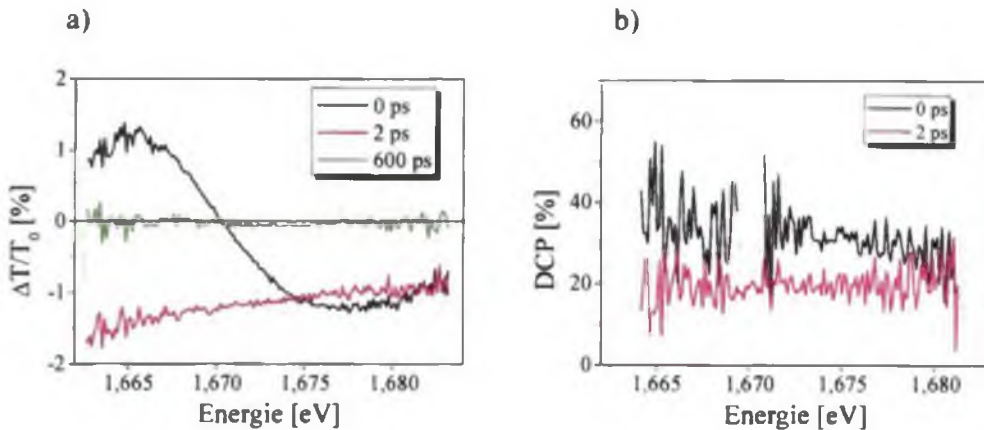


Obrázek 7-31: Dynamika a) diferenciální změny propustnosti a b) stupně kruhové polarizace při 300 K pro velká časová zpoždění. Spektrálně integrovaná měření $+25\text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu při excitačním (sondovacím) výkonu 20 mW (2 mW).

7.3.4 Měření nad hranou zakázaného pásu ($+65\text{ meV}$)

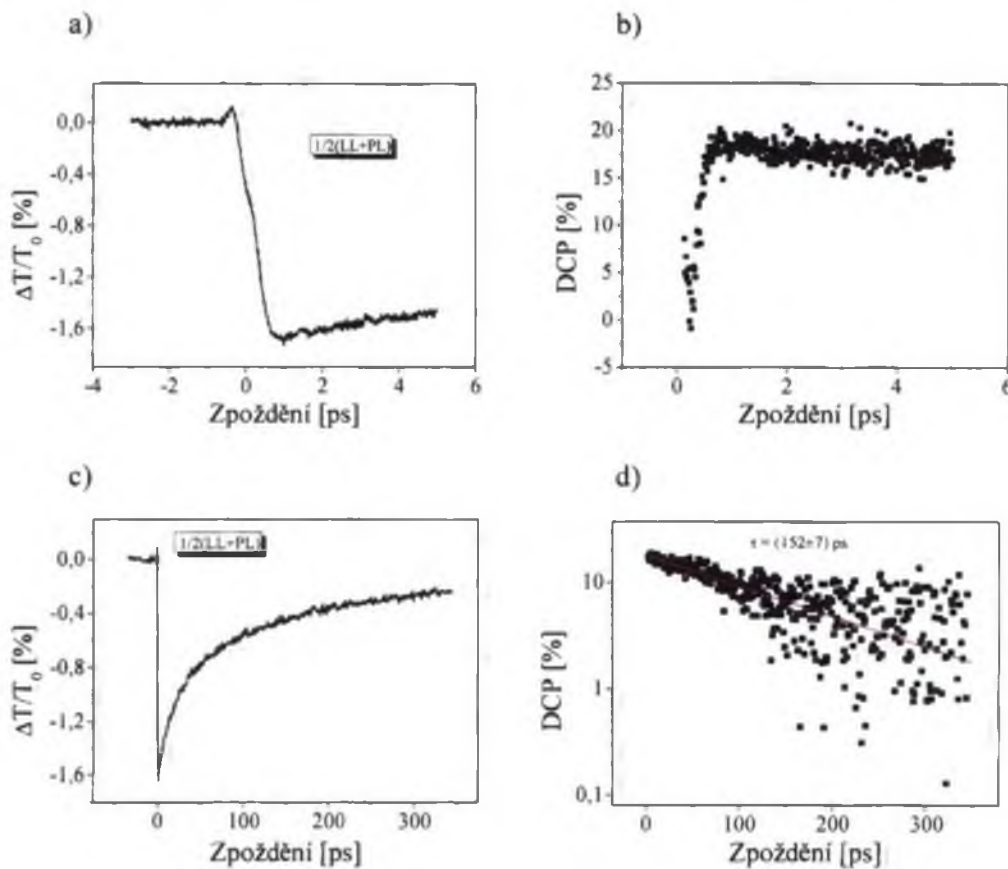
Měření $+65\text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu jsme provedli za účelem změření doby spinové koherence volných nosičů náboje při 20 K . Jak již bylo zmíněno v kapitole 7.3.3, určení doby spinové koherence volných nosičů náboje je jednodušší měřit právě při vyšších energiích nad hranou zakázaného pásu, než přímo na jeho hraně.

Nejdříve jsme změřili spektra diferenciální propustnosti a stupně kruhové polarizace v různých časech po excitaci vzorku (viz obrázek 7-32). Z těchto spekter je zřejmé, že je opět nutné měřit ve spektrálně rozlišeném režimu. Ve spektru diferenciální propustnosti se na časové škále jednotek pikosekund prolínají příspěvky saturace absorpce a indukované absorpce. Nic méně po překryvu excitačního a sondovacího pulzu je spektrum opět hladké a v rámci celého spektra dochází k monotónnímu dozívání jak diferenciální propustnosti tak stupně kruhové polarizace. Pro měření jsme proto vybrali centrální energii $1,673\text{ eV}$.



Obrázek 7-32: Spektrální závislost a) diferenciální propustnosti a b) stupně kruhové polarizace v různých časových zpožděních po překryvu pulzů. Měřeno při teplotě 20 K v oblasti $+65\text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu při excitačním výkonu 20 mW a sondování 2 mW .

Dynamiky diferenciální propustnosti a stupně kruhové polarizace na časové škále jednotek a stovek pikosekund jsou znázorněny v obrázku 7-33. Z dozívání stupně kruhové polarizace na časové škále stovek pikosekund je v logaritmickém měřítku zřejmé mono-exponenciální dozívání přes $1,5$ řádu velikosti DCP. Z této dynamiky jsme určili dobu dozívání spinové polarizace volných nosičů náboje při teplotě 20 K $\tau_s = (152 \pm 7)\text{ ps}$.



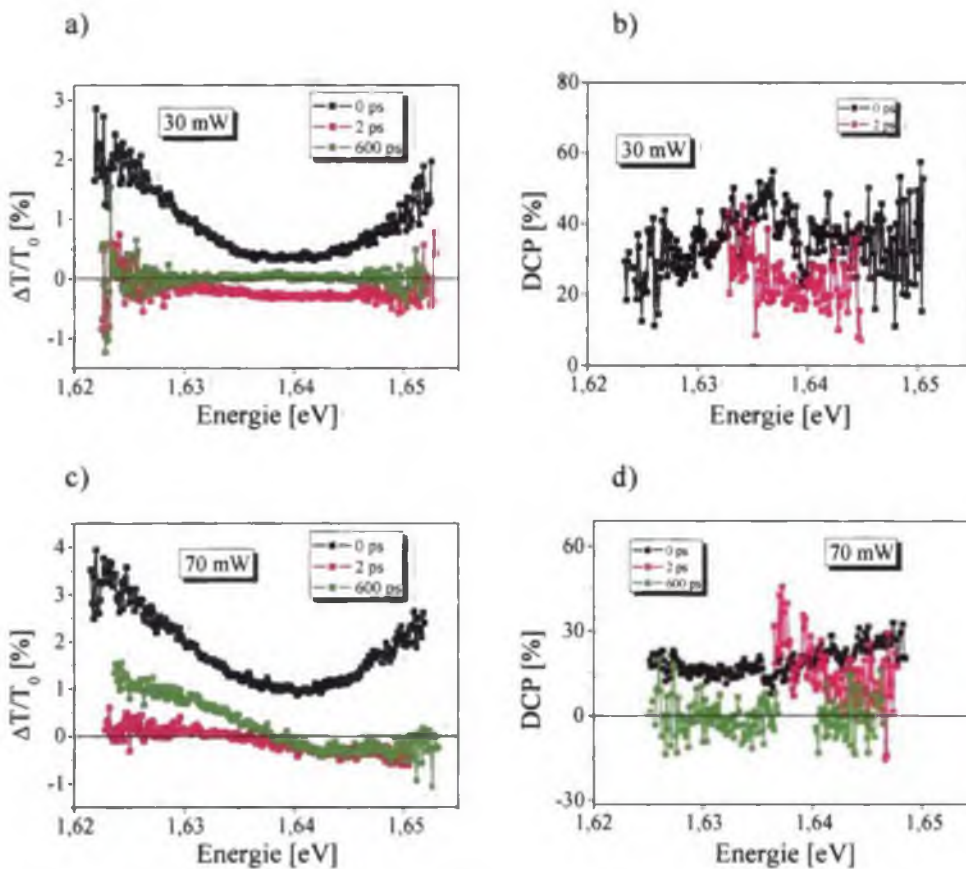
Obrázek 7-33: Spektrálně rozlišené dynamiky diferenciální propustnosti (a, c) a stupně kruhové polarizace (b, d) při 20 K na krátké (a, b) a dlouhé (c, d) časové škále po překryvu pulzů. Excitace $+65\text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu při excitačním (sondovacím) výkonu 20 mW (2 mW). Detekce sondování na $1,673\text{ eV}$.

7.3.5 Měření vysoko nad hranou zakázaného pásu (+113 meV)

Při měření doby spinové koherence volných nosičů náboje při 20 K jsme vycházeli z předpokladu, že tuto dobu není nutné měřit přímo na hraně zakázaného pásu, ale je jednodušší ji měřit při vyšších energiích. Tento předpoklad, který platí při dostatečně nízkých intenzitách, mimo jiné nyní ověříme při teplotě 300 K ve spektrální oblasti +113 meV nad gepem. Dobu spinové polarizace při 300 K jsme již změřili při energii +25 meV. Tuto dobu jsme určili na $\tau_s = (41 \pm 1)$ ps.

Další motivací měření spektrálně rozlišených dynamik vysoko nad hranou zakázaného pásu bylo studium příspěvků saturace absorpce a indukované absorpce v závislosti na intenzitě excitačního pulzu.

Z dynamiky spekter diferenciální propustnosti (viz obrázek 7-34 a, c)) je patrné, že při intenzitě 30 mW se projevuje příspěvek indukované absorpce pouze v čase 2 ps po excitaci vzorku. Naproti tomu při excitační intenzitě 70 mW má indukovaná absorpce významný vliv i v čase 600 ps po excitaci vzorku a navíc je měřený signál značně spektrálně závislý. Vzhledem k pozorované spektrální závislosti signálu jsme detailní měření dynamik nosičů náboje provedli při energiích 1,645 eV (viz obrázek 7-35) a 1,632 eV (viz obrázek 7-36).

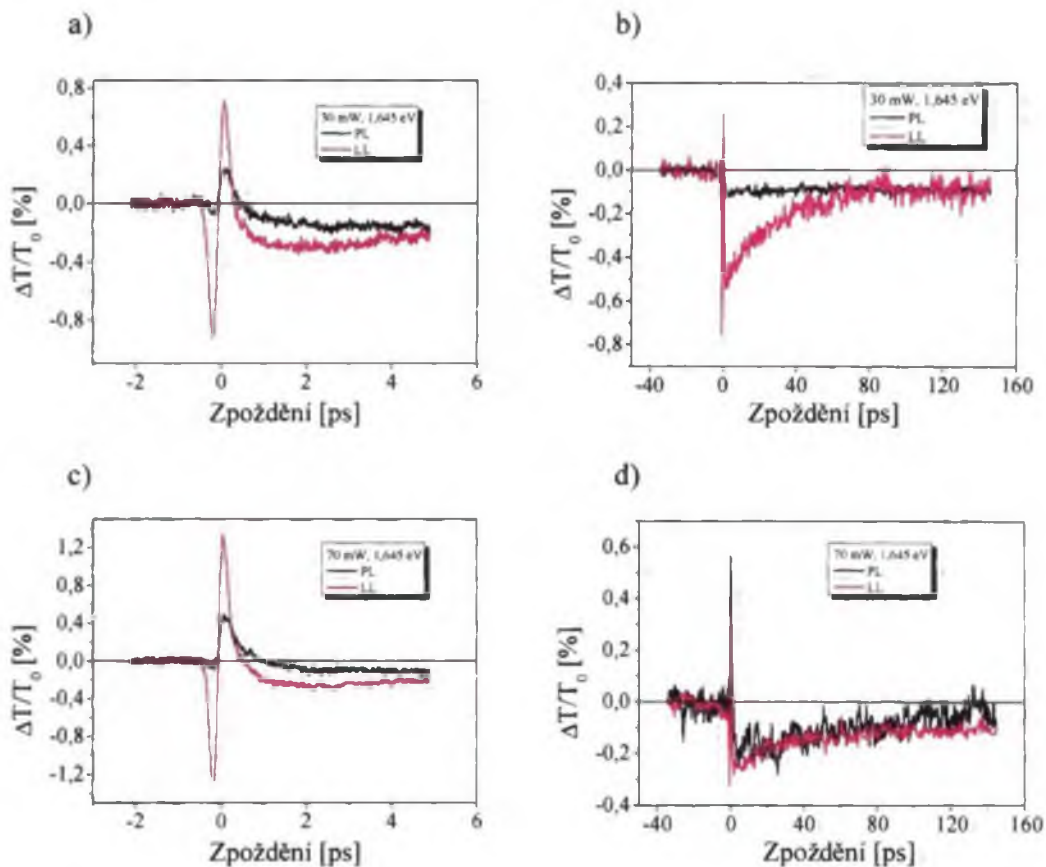


Obrázek 7-34: Spektrální závislost diferenciální propustnosti (a, c) a stupně kruhové polarizace (b, d) při intenzitě excitace (sondování) 30 mW (3 mW) (a, b) a 70 mW (3 mW) (c, d). Měření probíhalo při teplotě 300 K při naladění laseru +113 meV nad hranu zakázaného pásu. Spektra $\Delta T/T_0$ odpovídají aritmetickému průměru dynamik LL a PL. Sondovací svazek byl vždy levotočivě kruhově polarizovaný a točivost kruhově polarizovaného excitačního svazku se měnila z L na P.

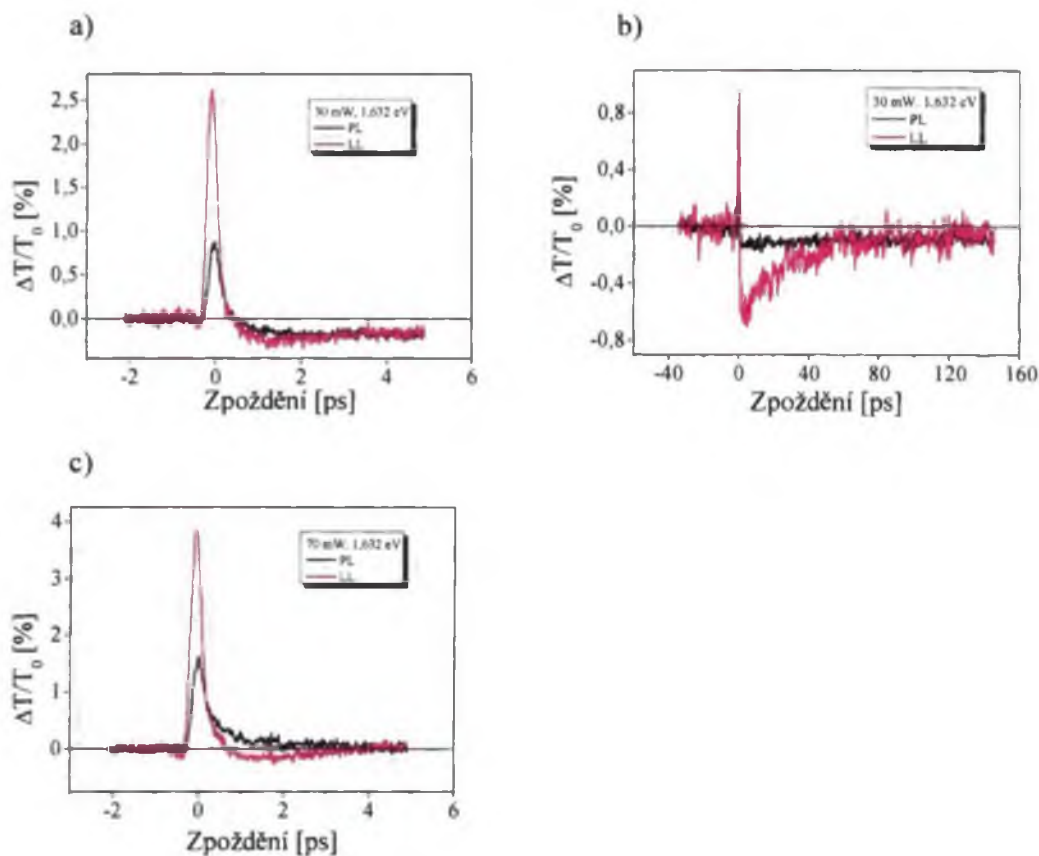
Spinově citlivé dynamiky nosičů náboje

Při sondování na energii $1,645\text{ eV}$ (viz obrázek 7-35) je zřejmá intenzitní závislost vzájemného vlivu saturace absorpce a indukované absorpce. Zatímco pro krátká časová zpoždění převládá saturace absorpce, pro delší zpoždění převládá indukovaná absorpce.

Při sondování na energii $1,632\text{ eV}$ převládá při excitačním výkonu 30 mW také indukovaná absorpce. Naproti tomu při excitačním výkonu 70 mW již převládá při opačných kruhových polarizacích saturace absorpce. Již na krátké časové škále jednotek pikosekund je zřejmé, že příspěvky saturace absorpce a indukované absorpce se vzájemně vyruší a po pouhých 4 ps je změna diferenciální propustnosti prakticky nulová. Nemělo proto význam provádět měření pro delší časy, než jsou jednotky pikosekund.



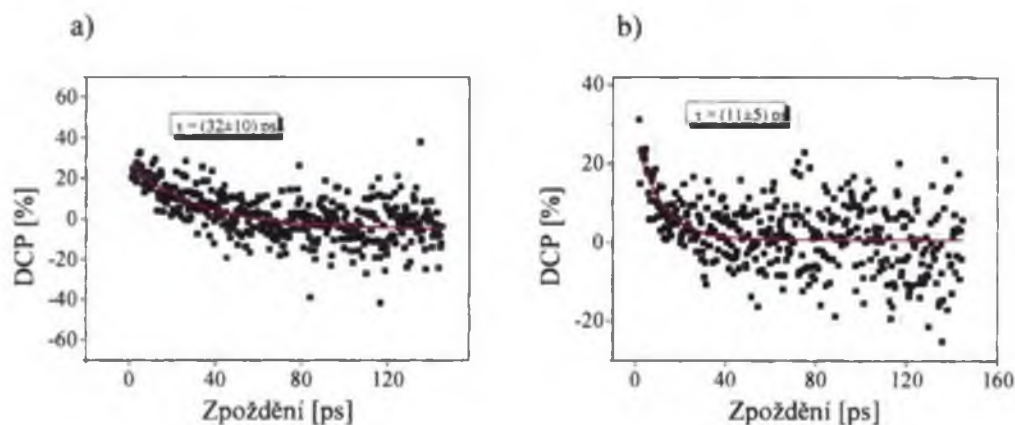
Obrázek 7-35: Dynamiky diferenciální propustnosti při 30 mW (a, b) a 70 mW (c, d) měřené na krátké (a, c) a dlouhé (b, d) časové škále po překryvu excitačního a sondovacího pulzu. Excitační svazek byl pravo- (P) nebo levotočivě (L) kruhově polarizovaný, sondovací zůstal levotočivě kruhově polarizovaný (viz označení v legendě PL resp. LL). Měření probíhalo při 300 K s centrální energií fotonů excitačního pulzu $+113\text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu. Sondovací pulz byl detekován spektrálně rozlišený na energii $1,645\text{ eV}$ (tj. $+116\text{ meV}$ nad gepem).



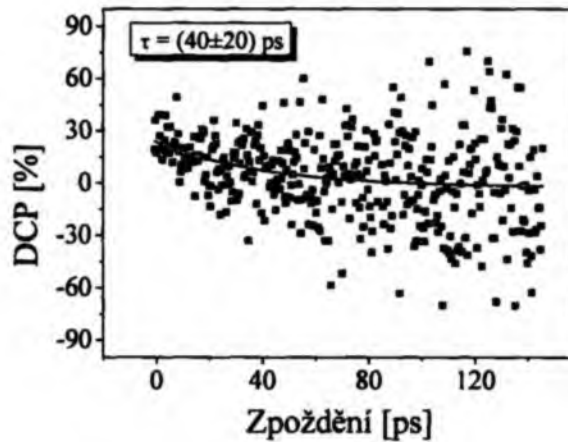
Obrázek 7-36: Dynamiky diferenciální propustnosti při 30 mW (a, b) a 70 mW (c) měřené na krátké (a, c) a dlouhé (b) časové škále po překryvu excitačního a sondovacího pulzu. Excitační svazek byl pravo- (P) nebo levotočivě (L) kruhově polarizovaný, sondovací zůstal levotočivě kruhově polarizovaný (viz označení v legendě PL resp. LL). Měření probíhalo při 300 K s centrální energií fotonů excitačního pulzu +113 meV nad hranou zakázaného pásu. Sondovací pulz byl detekován spektrálně rozlišený na energii 1,632 eV (tj. +103 meV nad gepem).

Studium spinové polarizace

Z dynamik dozívání stupně kruhové polarizace na energii sondování 1,645 eV (viz obrázek 7-37) a na energii 1,632 eV (viz obrázek 7-38) jsme určili dobu dozívání spinové



Obrázek 7-37: Dynamiky stupně kruhové polarizace při excitačním výkonu a) 30 mW a b) 70 mW. Měřeno při teplotě 300 K a excitaci +113 meV nad hranou zakázaného pásu. Sondování probíhalo spektrálně rozlišené na energii fotonů 1,645 eV (tj. +116 meV nad gepem).



Obrázek 7-38: Dynamika stupně kruhové polarizace při 300 K, excitaci +113 meV nad hranou zakázaného pásu, sondování spektrálně rozlišené na energii 1,632 eV (tj. +103 meV nad gepem) a excitačním výkonu 30 mW.

polarizace při excitačním výkonu 30 mW. Tyto doby jsou $\tau_s = (32 \pm 10)$ ps na energii sondování 1,645 eV a $\tau_s = (40 \pm 20)$ ps na energii 1,632 eV. Tyto doby jsou ve shodě s dobou spinové koherence získané při měření v oblasti +25 meV nad hranou zakázaného pásu $\tau_s = (41 \pm 1)$ ps. Tímto jsme potvrdili správnost předpokladu, že v konkrétním energetickém intervalu 0-113 meV nad hranou zakázaného pásu je doba spinové koherence nezávislá na energii nad gepem, při které měření provádíme.

Naproti tomu doba spinové koherence měřená při intenzitě excitace 70 mW je podstatně kratší. Vychází zhruba 11 ps. To je způsobeno tím, že při vyšší excitační intenzitě dochází k relativnímu zesílení vlivu saturace absorpce na měřené dynamiky diferenciální propustnosti. Pozorovaná intenzitní závislost naměřených signálů může být vysvětlena soupeřením dvou jevů, které přispívají k signálu $\Delta T/T_0$ s opačným znaménkem a mají odlišnou intenzitní závislost. Podobné efekty byly pozorovány v minulém roce také v GaAs [56]. V článku [56] byly tyto jevy identifikovány jako plnění fázového prostoru (signál přispívající s kladným znaménkem k $\Delta T/T_0$ mající lineární intenzitní závislost) a spinově citlivé mnohačasticové efekty (signál se záporným znaménkem mající sub-lineární intenzitní závislost). Z námi provedených měření v CdTe se zdá, že vliv spinově-citlivých mnohačasticových efektů na $\Delta T/T_0$ je podstatně silnější v CdTe než v GaAs [55].

8 Model dynamik $\Delta T/T_0$ při excitaci $+25 \text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu a teplotě 300 K

V tomto modelu jsme se snažili pomoci nejjednoduššího možného modelu kinetických rovnic popsat základní charakteristické rysy spektrálně integrovaných dynamik diferenciální propustnosti měřené $+25 \text{ meV}$ nad hranou zakázaného pásu při teplotě 300 K . Naměřená data viz obrázek 7-29. Při interpretaci těchto dat využijeme faktu, že signál diferenciální propustnosti je ovlivněn zejména dynamikou fotoexcitovaných elektronů [51].

Nejdříve jsme se zabývali vlastnostmi dynamik na pikosekundové časové škále. Zde je možné zanedbat rekombinační procesy a jedná se tudíž o problém řešitelný v aproximaci slabé absorpce analyticky.

V dalším kroku následovalo vytvoření modelu na bázi kinetických rovnic popisujících dynamiku $\Delta T/T_0$ na časové škále do cca 800 ps .

8.1 Model kinetických rovnic na pikosekundové časové škále

Jak již bylo zmíněno, na časové škále jednotek pikosekund ihned po excitaci vzorku lze dynamiku popsat jednoduchou rovnicí (8.1), kde člen G značí zdrojový člen, ξ kvantovou účinnost, α_0 lineární absorpci, I_0 intenzitu světelného svazku uvnitř vzorku, h je Planckova konstanta, ν frekvence dopadajícího záření, n koncentrace nosičů náboje, n_{sat} je saturační koncentrace volných nosičů náboje a τ_p je doba trvání pulzu. Vztah mezi dobou τ_p a τ_{FWHM} je $\tau_{FWHM} = 2 \tau_p (\ln 2)^{1/2}$.

$$\frac{dn}{dt} = G(t) = \frac{\xi \alpha_0 I_0}{h\nu \left(1 + \frac{n}{n_{sat}}\right)} e^{-\left(\frac{t}{\tau_p}\right)^2} e^{-az} \quad (8.1)$$

Řešením diferenciální rovnice (8.1) získáme řešení ve tvaru (8.2).

$$n = n_{sat} \left(-1 + \sqrt{1 + \frac{2\tau_p \sqrt{\pi} \xi \alpha_0 I_0}{n_{sat} h\nu} e^{-az}} \right) \quad (8.2)$$

Při silné absorpci ve vzorku tedy koncentrace nosičů náboje závisí na podélné souřadnici z ve vzorku. V první aproximaci tuto závislost zanedbáme. Tato aproximace v našem silně absorbujícím vzorku není oprávněná, ale při uvážení vzorku a jeho interakce se světlem jakožto vystředovaného systému v podélném směru, pak takto lze alespoň v první aproximaci postupovat. Člen e^{-az} proto nahradíme jeho střední hodnotou v podélném směru vzorku, což je reciproká hodnota absorpce. Ve středních hodnotách tedy budeme uvažovat řešení ve tvaru (8.3).

$$\bar{n} = n_{sat} \left(-1 + \sqrt{1 + \frac{2\tau_p \sqrt{\pi} \xi \alpha_0 I_0}{n_{sat} Ah\nu}} \right) \quad (8.3)$$

Změnu diferenciální propustnosti pak spočítáme dle (8.4), kde σ je účinný průřez absorpce a d je tloušťka vzorku.

$$\frac{\Delta T}{T_0} = \sigma \bar{n} d \quad (8.4)$$

Ve vztahu (8.3) vystupuje člen I_0 , který vyjádříme ve vztahu k excitačnímu výkonu výrazem (8.5).

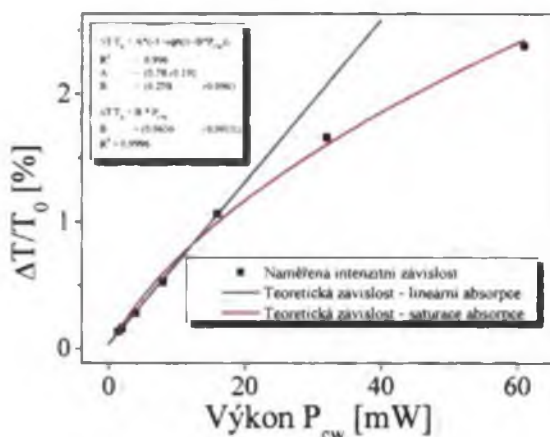
$$I_0 = T^4 \left(1 - \left(\frac{n-1}{n+1} \right)^2 \right) \frac{4P_{cw}}{\pi^{3/2} d_{FWHM}^2 f_{rep} \tau_p} \quad (8.5)$$

Kde: T ...propustnost skla, n ...index lomu CdTe, P_{cw} ...kontinuální výkon laseru, d_{FWHM} ...průměr stopy laserového svazku na vzorku, f_{rep} ...opakovací frekvence laseru, τ_p ...délka pulzu (vztah k FWHM viz poznámky ke vztahu 8.1).

Ve vztahu (8.5) má člen zahrnující propustnost skla význam zahrnutí fresnelovských ztrát při průchodu svazku z místa měření přes čtyři rozhraní sklo/vzduch, která představovala jedna čočka a okénko do kryostatu. Člen obsahující fázový index lomu CdTe zahrnuje fresnelovské ztráty při průchodu světla do objemu vzorku.

Nyní již známe veškeré parametry v teoretické závislosti diferenciální propustnosti na excitačním výkonu kromě dvou fitovacích parametrů n_{sat} a σ . Změřená závislost diferenciální propustnosti na excitačním výkonu viz obrázek 8-1. Je zřejmé, že dochází k saturaci absorpce. Pro srovnání jsme provedli při nízkých intenzitách fitování lineární funkcí $\Delta T/T_0 = C \cdot P_{cw}$ a v celém rozsahu intenzit fitování funkcí $\Delta T/T_0 = A(-1 + \sqrt{1 + BP_{cw}})$. V limitě pro $P_{cw} \rightarrow 0$ přejde tento vztah na:

$$\Delta T/T_0 = A(-1 + \sqrt{1 + BP_{cw}})_{P_{cw} \rightarrow 0} = \frac{AB}{2} P_{cw} \quad (8.6)$$

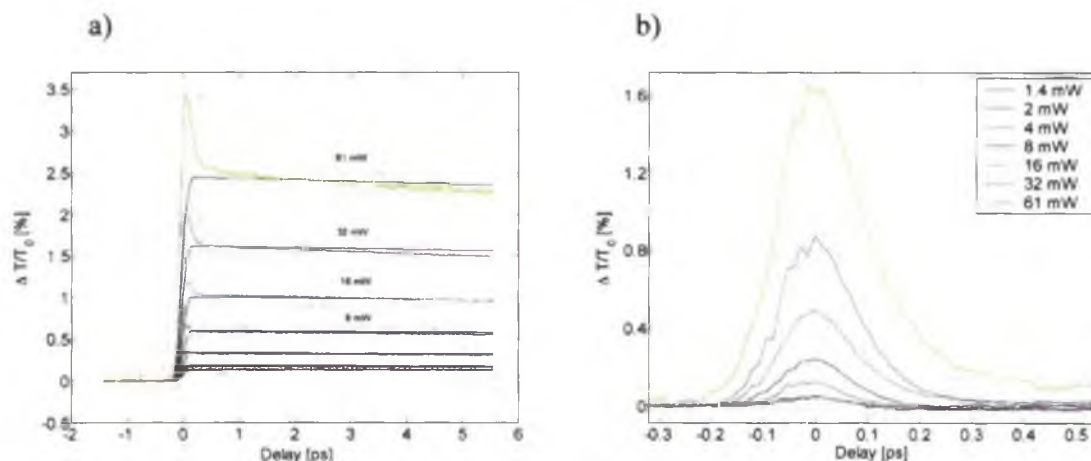


Obrázek 8-1: Závislost amplitudy signálu diferenciální propustnosti těsně po překryvu excitačního a sondovacího pulzu (bez započtení signálu nacházejícího se při překryvu pulzů). Plnými čarami jsou zobrazeny teoretické závislosti při uvážení lineární absorpce (modrá plná křivka) a při započtení saturace absorpce (červená plná křivka).

Nafitováním intenzitní závislosti v příslušném oboru intenzit získáme $A=(0.78 \pm 0.19) \%$, $B=(0.26 \pm 0.10)$, $C=(66.7 \pm 1.5) \times 10^{-3} \%$. Ze vztahu (8.6) je zřejmé, že by mělo platit $C=AB/2$. Tento vztah v rámci chyby fitu parametrů platí. Neboli jsme ověřili, že při nízkých intenzitách přechází vztah (8.6) na jednoduchou lineární závislost diferenciální propustnosti na excitačním výkonu. Z parametrů A a B lze určit parametry σ a n_{sat} , které vycházejí $\sigma=1.1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ a $n_{sat}=1.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

V obrázku 8-2 a) je zobrazeno srovnání výše uvedeného teoretického modelu s naměřenými daty. Je zřejmé, že tento jednoduchý model nepopisuje dynamiku $\Delta T/T_0$ v časové nule, tedy při překryvu pulzů. Je proto výhodné provést odečtení naměřených dat a teoretického modelu (viz obrázek 8-2). Tento pik je při nízkých intenzitách symetrický. Při

vyšších intenzitách začíná na úběžné straně klesat pomaleji. Tento pik interpretujeme jako nelineární jev přetékání (difrakce) silnějšího excitačního optického pole do směru šíření slabšího sondovacího svazku.



Obrázek 8-2: Srovnání a) naměřených dat s teoretickou závislostí na krátké časové škále po překryvu pulzů. V teoretické závislosti je započtena saturace absorpce. V obrázku b) je zobrazen rozdíl mezi naměřenou a teoretickou závislostí diferenciální propustnosti. Dynamiky byly měřeny při horizontální polarizaci excitačního svazku a vertikální polarizaci sondovacího svazku.

8.2 Studium rekombinačních mechanismů

Z parametrů účinného průřezu absorpce a saturované koncentrace nosičů náboje jsme získali správné škálování absolutní hodnoty diferenciální propustnosti ihned po excitaci vzorku v závislosti na excitačním výkonu. Nyní se zaměříme na časovou škálu řádu stovek pikosekund po excitaci vzorku. V této časové oblasti se již projevují rekombinační procesy. Určení možných rekombinačních procesů bude předmětem následujících modelů.

8.2.1 Vliv bimolekulárních a Augerových rekombinačních mechanismů

Z dynamik dozívání diferenciální propustnosti je zřejmé, že nelze použít jen mono-exponenciální dozívání. V prvním modelu jsme proto ke členu popisujícím rekombinace přes hladinu v zakázaném pásu přidali bimolekulární procesy.

$$\frac{dn}{dt} = G(t) - \frac{n}{\tau} - \gamma n^2 \quad (8.7)$$

Člen $G(t)$ má význam zdroje elektronů. Tento člen byl podrobně prostudován v předchozí kapitole 8.1.

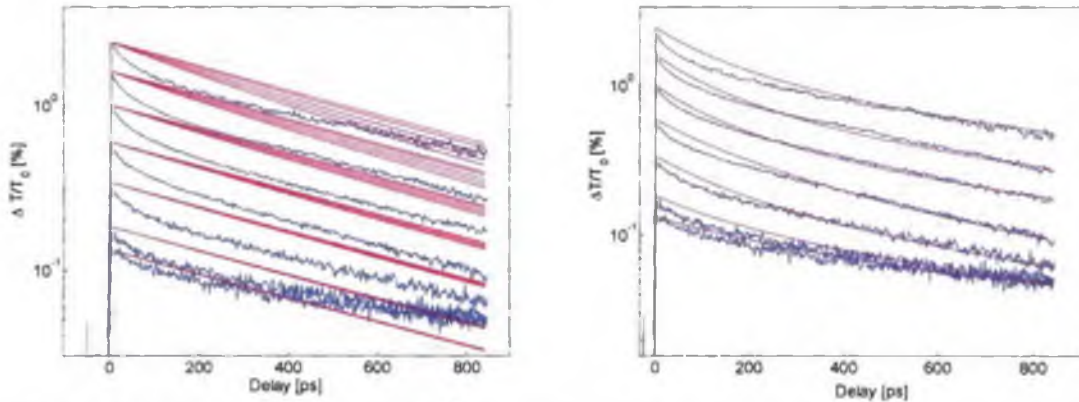
V obrázku 8-3 a) je znázorněno postupné odchylování řešení od řešení mono-exponenciálního při zvyšování parametru γ , který popisuje velikost vlivu bimolekulárních procesů. Z projevu parametru bimolekulární rekombinace je zřejmé, že nepopisuje příliš dobře změřenou intenzitní závislost. Bimolekulární procesy mají mnohem silnější intenzitní závislost, než kterou vykazují naměřená data.

Provedli jsme tedy test, který spočíval v nafitování parametrů γ a τ pro každou intenzitu zvlášť. V případě, že tento model je správný, neměly by takto získané parametry záviset na intenzitě excitace, resp. na koncentraci nosičů náboje. Takto získané nejlepší fity pro každou intenzitu zvlášť jsou zobrazeny v obrázku 8-3 b). V obrázku 8-4 jsou příslušné intenzitní závislosti parametrů γ a τ . Parametr τ lze považovat s výjimkou excitačního výkonu 61 mW za

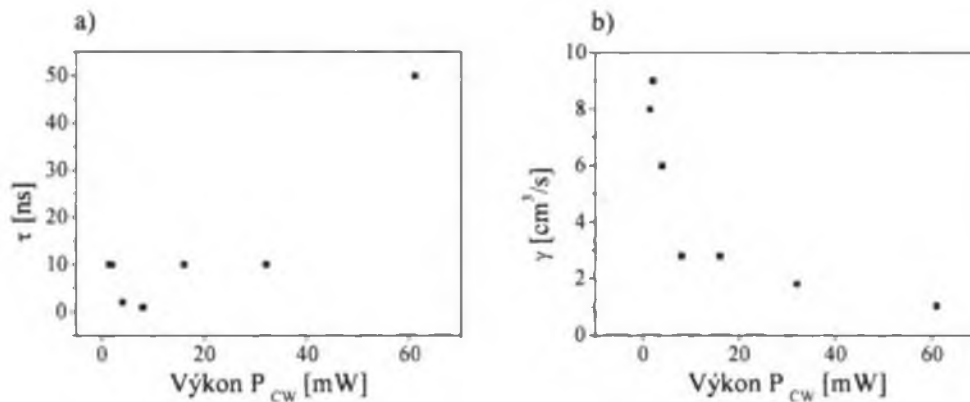
intenzitně nezávislý. Tento závěr ale již neplatí pro parametr γ . Tento parametr je intenzitně závislý, přičemž má trend nepřímé úměrnosti na intenzitě. Pokud by tento model neplatil jen z důvodu nezapočtení členu Augerovy rekombinace, který je tvaru $B_1 n^3$, pak by parametr γ musel na intenzitě záviset lineárně. Toto je tedy vedle projevu parametru γ v intenzitní závislosti druhý test, který nám potvrdil nesprávnost tohoto modelu. V dynamice diferenciální propustnosti nejsou dominantní ani bimolekulární ani Augerovy rekombinační procesy.

a)

b)



Obrázek 8-3: Model zahrnující bimolekulární rekombinace. Obrázek a) znázorňuje projev rostoucího parametru γ v intenzitní závislosti. Obrázek b) ukazuje nejlepší fit parametrů γ a τ pro každou intenzitu zvlášť. Červené křivky značí teoretické modely, modré jsou naměřená data, přičemž od shora dolů postupně klesá intenzita excitace 61, 32, 16, 8, 4, 2, 1.4 mW. V obrázku a) se růst parametru γ projevuje v rychlejším poklesu dynamik.



Obrázek 8-4: Intenzitní závislost parametrů a) τ a b) γ v modelu uvažujícím bimolekulární rekombinační mechanismus.

8.2.2 Model dvou hladin v zakázaném pásu

Další rozšíření nejjednoduššího modelu je model započítávající vliv pastí. Takový model lze popsat soustavou dvou obyčejných diferenciálních rovnic prvního řádu (8.8).

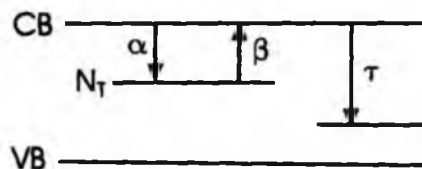
$$\begin{aligned} \frac{dn}{dt} &= G(t) - \frac{n}{\tau} - \alpha n(N_T - n_i) \\ \frac{dn_i}{dt} &= \alpha n(N_T - n_i) \end{aligned} \quad (8.8)$$

Zde jsme pouze doplnili rovnici popisující obsazení past'ových hladin n_i a člen bimolekulární rekombinace jsme nahradili členem popisujícím záchyt na uvažovaných pastech.

Tento model opět nepopisuje v uspokojivé míře naměřenou intenzitní závislost. Již z názoru je zřejmé při nízkých intenzitách bude úbytek počtu elektronů mnohem rychlejší než při vysokých intenzitách. Tento fakt lze vyřešit započtením členu zpětné termální excitace elektronu do vodivostního pásu (tj. člen βn_i). Rovnice pak mají tvar (8.9).

$$\begin{aligned} \frac{dn}{dt} &= G(t) - \frac{n}{\tau} - \alpha n(N_T - n_i) + \beta n_i \\ \frac{dn_i}{dt} &= \alpha n(N_T - n_i) - \beta n_i \end{aligned} \quad (8.9)$$

Schématické znázornění tohoto modelu je zobrazeno v obrázku 8-5. Tento model má již hledané charakteristiky doznívání diferenciální propustnosti.



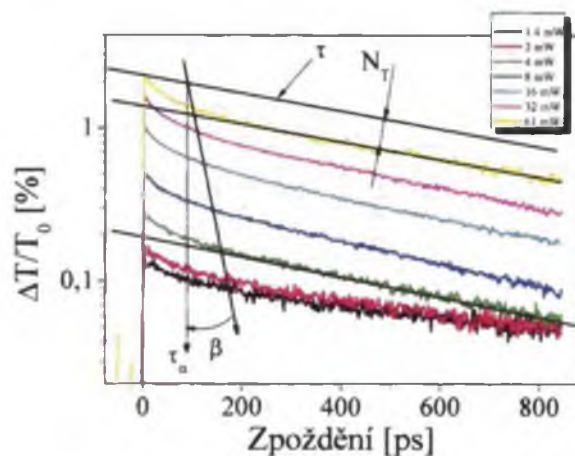
Obrázek 8-5: Schéma modelu se dvěma hladinami v zakázaném pásu. Značení: CB...vodivostní pás, VB...valenční pás, N_T ...záchytné centrum pro elektrony, hladina s dobu záchytu elektronu τ je rekombinační hladina.

Při podrobné analýze projevu jednotlivých parametrů uvažovaného modelu na tvar dynamik a intenzitní závislosti lze i přes nelineární závislosti a vzájemné provázanosti veličin α , β , γ a N_T odhalit základní trendy při změně všech čtyř parametrů. Tyto trendy jsou schématicky znázorněny v obrázku 8-6. Parametr τ určuje směrnici mono-exponenciálního doznívání na dlouhé časové škále řádu stovek pikosekund po excitaci vzorku. Dalším znakem změřených dynamik je neexponenciální doznívání na škále prvních zhruba 100 ps po excitaci. Doba τ_α , po které odezní tento příspěvek k celkové dynamice je dána vztahem $\tau_\alpha = [\alpha(N_T - n_i)]^{-1}$. Je tedy přímo spojená s parametrem α . Koncentrace pastí N_T jen určuje rozmezí hodnot, ve kterých se doba τ_α pohybuje. Na interval možných hodnot parametru τ_α má však mnohem větší vliv parametr β . Ten se projevuje především v intenzitní závislosti a určuje, nakolik jsou hodnoty τ_α stejné při různých intenzitách. Parametr N_T určuje odchýlení modelu od mono-exponenciálního doznívání na dlouhé časové škále. Z těchto úvah lze odhadnout velikosti jednotlivých veličin, přičemž $\tau \approx 400-800$ ps, $\tau_\alpha \approx 50-250$ ps, $\beta^{-1} \approx 50-250$ ps.

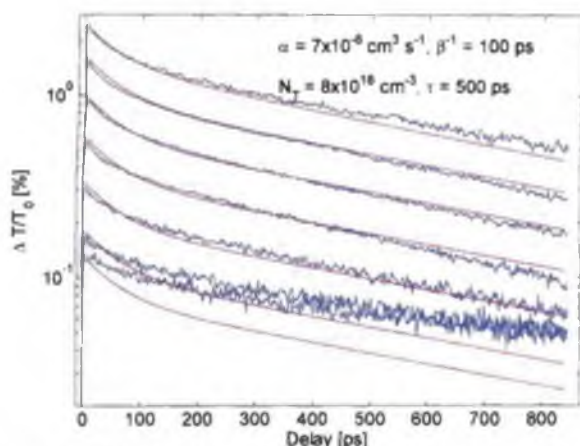
Se znalostí výše uvedených trendů lze naitovat naměřené intenzitní závislosti (viz obrázek 8-7). Kvalita fitu je poměrně dobrá pro vysoké excitační intenzity. Pro dvě nejnižší intenzity již tak dobré shody dosaženo nebylo. Absolutní hodnota chyby fitu je však srovnatelná s chybou u vyšších intenzit (osa y je v logaritmickém měřítku). Parametry tohoto modelu pak vycházejí $\alpha = 7 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $\beta^{-1} = 100$ ps, $N_T = 8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ a $\tau = 500$ ps. Hodnota τ_α se pohybuje v rozmezí 180-270 ps. Parametry τ , τ_α a β vycházejí při srovnání naměřených dat v předpokládaných mezích. Velikost koncentrace pastí N_T lze sice jen stěží odhadnout z charakteristik naměřených intenzitních závislostí, ale vzhledem k jeho interpretaci jakožto koncentrace pastí vychází tato hodnota příliš vysoká.

Nesrovnalost parametru N_T s reálnými hodnotami koncentrace pastí plyne pravděpodobně opět z uvážení špatného modelu. V objemovém CdTe ztenčeném na tloušťku 2 μm je silná povrchová rekombinace, kterou tento model dvou hladin není schopen popsat [57]. Obejití tohoto faktu lze provést reinterpretací jednotlivých členů uvažovaného modelu. Abychom do modelu efektivně zahrnuli povrchovou rekombinaci, pak je potřeba uvažovat

vzorek vystředovaný přes celý svůj objem, včetně povrchu. Tím efektivně přeneseme povrchovou rekombinaci do členu $\alpha n(N_T - n)$. To mimo jiné znamená, že koeficient N_T již nesouvisí s koncentrací pastí v objemu vzorku, ale s koncentrací defektů na povrchu. Toto je sice pouze formální krok v interpretaci jednotlivých členů, ale pro správný pohled na dynamiku nosičů náboje ve ztenčeném CdTe je zcela nezbytný.



Obrázek 8-6: Vliv parametrů τ , N_T , β a τ_α na tvar dynamik při jednotlivých intenzitách a jejich projev v intenzitní závislosti v modelu dvou past'ových hladin.

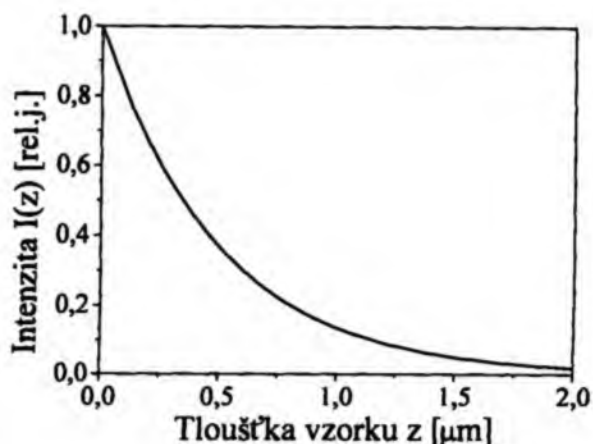


Obrázek 8-7: Výsledek modelu se dvěma past'ovými hladinami.

8.2.3 Difúzní model – zahrnutí povrchové rekombinace

Vzhledem ke skutečnostem vedoucím k nerigoróznosti modelu dvou hladin v zakázaném pásu (viz kap. 8.2.2) zde naznačíme směr, kterým by se mělo ubírat teoretické studium interpretace naměřených dat.

V první řadě je nutné uvažovat nehomogenní absorpci světla v podélném směru vzorku. Z absorpance $A \approx 4$ nad hranou zakázaného pásu při 300 K plyne, že na opačné straně vzorku je intenzita procházejícího světla již pouhá 2 % vstupní intenzity (viz obrázek 8-8). Kvůli takto silně nehomogenní absorpci je nutné do teoretického modelu započítat vliv difúze.



Obrázek 8-8: Průběh intenzity vstupujícího světelného pole ve směru z, tj. směr šíření pulzů.

Při uvážení faktu silné povrchové rekombinace a vysoké koncentrace nosičů náboje u povrchu (viz obrázek 8-8) je zřejmá nezbytnost započtení také tohoto rekombinačního kanálu. Nejjednodušší možný model zahrnující difúzi a povrchovou rekombinaci pak lze popsat rovnicemi (8.10).

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\xi \alpha_0 I_0}{h\nu \left(1 + \frac{n}{n_{sat}}\right)} e^{-\alpha z} e^{-\left(\frac{t-z/v_g}{\tau_r}\right)^2} + D \frac{\partial^2 n}{\partial z^2}$$

s okrajovou podmínkou

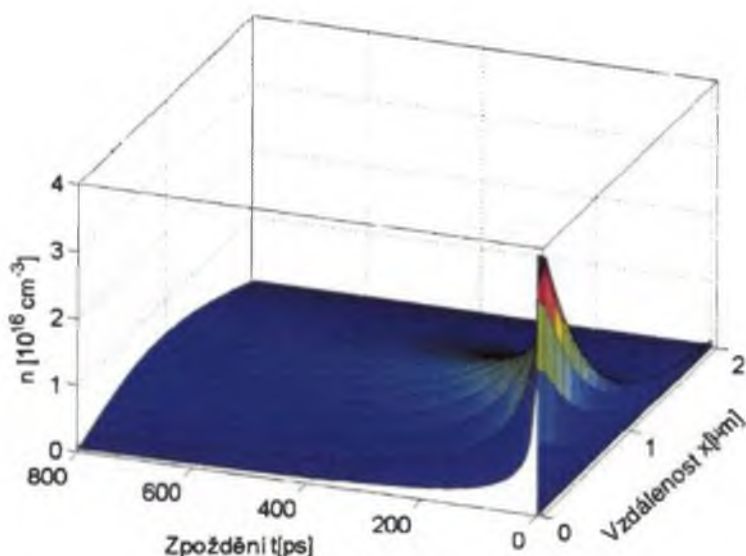
$$\frac{\partial n}{\partial z} \Big|_{z=0} = \frac{S}{D} n(z=0, t), \quad \frac{\partial n}{\partial z} \Big|_{z=d} = \frac{S}{D} n(z=d, t)$$

V rovnici (8.10) vystupují nové parametry S a D , které popisují míru povrchové rekombinace a difúzi nosičů. Tato rovnice má výhodu oproti modelu uvažovanému v kapitole 8.2.2, kterou je přítomnost pouhých dvou fitovacích parametrů. Těmi jsou právě povrchová rekombinace S a difúzní koeficient D . Případné zahrnutí dynamiky děr, pastí a elektrického pole je již popsáno v kapitole 5.3. Člen popisující generaci nosičů náboje zahrnuje exponenciální pokles intenzity budícího světla při průchodu vzorkem a časový vývoj průchodu pulzu vzorkem.

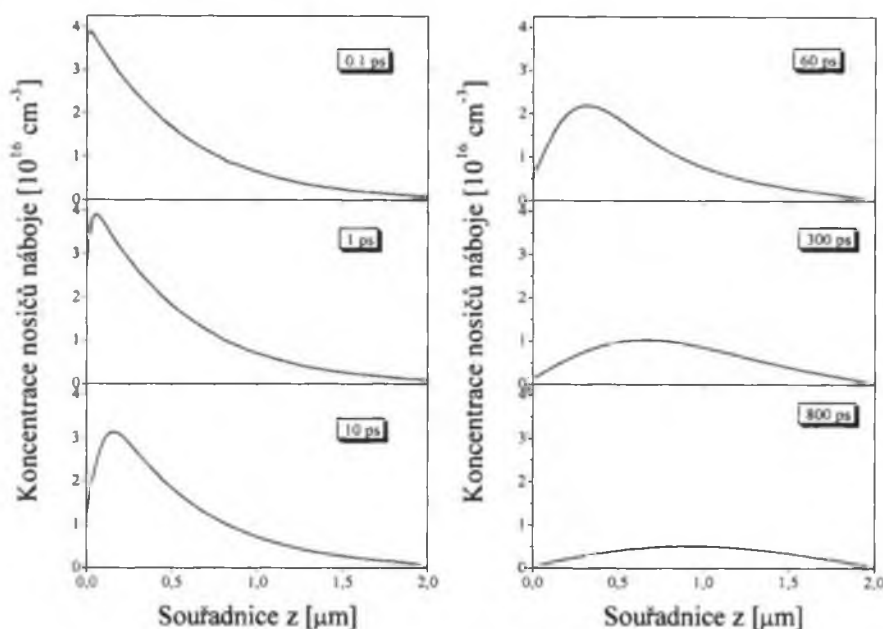
Dále je zapotřebí zobecnit vztah mezi koncentrací nosičů náboje a změnou diferenciální propustnosti. Vzhledem k faktu, že v experimentech excitace a sondování vidíme převážně dynamiku elektronů [51], ať již ovlivněnou nebo neovlivněnou děrami, lze při homogenní distribuci elektronů psát rovnici $\Delta T/T_0 = \sigma n d$, kde d je tloušťka vzorku. Při nehomogenní distribuci elektronů si vzorek rozdělíme na infinitezimálně malé proužky dz , přičemž na každém elementu dz dojde ke změně $d(\Delta T/T_0) = n(z, t) \sigma dz$. V celém vzorku tedy dojde ke změně diferenciální propustnosti dané integrálem (8.11).

$$\frac{\Delta T}{T_0}(t) = \sigma \int_0^d n(z, t) dz$$

Numerické řešení difúzní rovnice (8.10) je znázorněno v obrázku 8-9. V tomto modelu předpokládáme, že pohyb elektronů je ovlivněn děrami, a proto jako difúzní koeficient bereme hodnotu $D=5 \text{ cm}^2/\text{s}$, což je hodnota mezi elektronovým ($D_e=25 \text{ cm}^2/\text{s}$) a děrovým ($D_h=2 \text{ cm}^2/\text{s}$) difúzním koeficientem. Profily řešení pro vybrané časy po excitaci jsou v obrázku 8-10.



Obrázek 8-9: Řešení difúzní rovnice se započtením povrchové rekombinace při excitačním výkonu 61 mW . Difúzní koeficient $D=5 \text{ cm}^2/\text{s}$, koeficient povrchové rekombinace $S=1 \times 10^6 \text{ cm/s}$.

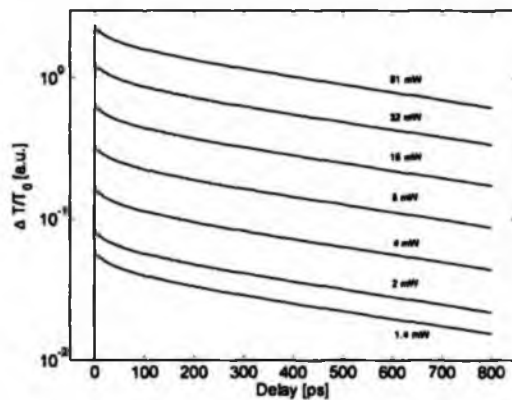


Obrázek 8-10: Prostorový profil koncentrace nosičů náboje v různých časech po excitaci vzorku. Započtení difúze a povrchové rekombinace.

V obrázku 8-10 značí souřadnice z směr, ve kterém přichází excitační pulz. Tzn. v $z=0$ vstupuje pulz do vzorku. Poté se exponenciálně tlumí napříč vzorkem. V čase $0,1 \text{ ps}$ je již většina pulzu absorbována. Jako další dominantní proces přichází povrchová rekombinace. Ta způsobuje prudký pokles koncentrace nosičů náboje na přední straně vzorku ($z=0$), a to převážně během několika prvních desítek pikosekund po excitaci. Na časové škále stovek pikosekund po excitaci dominuje difúze nosičů způsobená jejich nehomogenní distribucí ve vzorku. Stále však má vliv povrchová rekombinace, která zde sice již dramaticky nemění tvar

distribuce rozložení nosičů náboje, ale odvádí tyto nosiče pryč z vodivostního pásu, neboli zmenšuje jejich celkový počet.

Dále jsme provedli kvalitativní výpočet intenzitní závislosti dynamik diferenciální propustnosti (viz obrázek 8-11). Srovnáním s naměřenými daty (viz obrázek 8-6) je patrné, že difúzní model se započtením povrchové rekombinace dává skutečně kvalitativně shodné výsledky s naměřenými daty. Neuvádíme přímé srovnání experimentu a teorie, neboť s uvážením difúzního modelu dramaticky vzroste náročnost výpočtu, a tudíž přesnější výpočet bude předmětem následného výzkumu. Důležitým faktem hovořícím ve prospěch tohoto modelu oproti modelu dvou hladin v zakázaném pásu je přítomnost pouhých dvou fitovacích parametrů. Model dvou hladin v zakázaném pásu uvažuje čtyři fitovací parametry. Je zde tedy větší riziko přeparametrizování modelu, neboli vzájemné závislosti parametrů než u difúzního modelu se dvěma parametry.



Obrázek 8-11: Intenzitní závislost diferenciální propustnosti při započtení difúze a povrchové rekombinace. Udávaný výkon značí kontinuální výkon excitačního svazku.

9 Shrnutí výsledků

V této práci jsme se zabývali dynamikou nosičů náboje v objemovém CdTe. Zaměřili jsme se na studium dvou vzorků, které byly leštěním, a v případě vzorku Y3 i leptáním, ztenčeny na tloušťku několika mikrometrů (vzorek Y1 měl tloušťku $1,5 \mu\text{m}$ a vzorek Y3 měl tloušťku $2 \mu\text{m}$). Tato jejich relativně malá tloušťka nám pak umožnila studovat dynamiku fotoexcitovaných nosičů náboje pomocí metod ultrarychlé laserové spektroskopie v transmisní geometrii.

Cílem provedených experimentů bylo především určení dob orbitální a spinové koherence volných nosičů náboje a excitonů. Pro tento účel jsme postavili dva základní experimenty. Jednak to byl experiment pro měření autodifrakce a jednak experiment pro měření diferenciální propustnosti pomocí metody excitace a sondování. Měření jsme prováděli pomocí 90 fs laserových pulsů, jejichž vlnová délka byla laděna v okolí absorpční hrany CdTe.

Studiem dynamiky autodifrakce jsme zjistili, že při teplotě 20 K má doznívání orbitální koherence excitonů dvě složky. Ihned po excitaci vzorku, resp. vybuzení koherentní polarizace, dochází k dekoherenci s charakteristickou dobu doznívání 2 ps a následně se projeví příspěvek s charakteristickou dobu doznívání přibližně 10 ps . Ztráta orbitální koherence volných nosičů náboje je podstatně rychlejší - při stejných experimentálních podmínkách je příslušná charakteristická doba pouze $0,3 \text{ ps}$. Při zvýšení teploty vzorku dochází vlivem potlačení rozptylu nosičů náboje na ionizovaných příměsích k prodloužení této doby až na 2 ps při teplotě 100 K . Další zvyšování teploty naopak vede ke zkrácování této doby až na $0,5 \text{ ps}$ při 300 K . Směrnice tohoto poklesu je blízká mocninné teplotní závislosti $T^{-3/2}$, což ukazuje, že v tomto teplotním intervalu je pro ztrátu orbitální koherence nosičů dominantní rozptyl na kmitech mříže.

Pomocí polarizačně a spektrálně rozlišené metody excitace a sondování jsme zjistili, že při teplotě 20 K dochází vlivem absorpce silného excitačního pulsu ke značným změnám propustnosti vzorku zejména ve spektrální oblasti, kde se nachází excitonová absorpce. Konkrétně jsme pozorovali, že příslušné excitonové absorpční píky se zmenšují, rozšiřují a posunují k větším energiím, což je zcela v souladu s výsledky pozorovanými v jiných polovodičích. V této spektrální oblasti jsme ve změřených dynamikách diferenciální propustnosti pozorovali také několik typů oscilací, které se lišily spektrálním oborem, kde byly patrné, dobou pozorovatelnosti a také závislostí na polarizaci použitého laserového záření. Za zmínku stojí zejména oscilace pozorované pro záporná časová zpoždění v oblasti slabé absorpce vzorků, jejichž amplituda ani frekvence nezávisely na polarizaci světla, ale naopak silně závisely na vlnové délce detekovaných fotonů a na tloušťce vzorků. Původ těchto oscilací zatím není zcela jasný, ale jejich vlastnosti ukazují, že by mohly být spojeny s efekty šíření laserového pulsu ve vzorku.

Ve spektrální oblasti, kde dominuje absorpce volných nosičů náboje, jsem pozorovali jak saturaci absorpce, tak i indukovanou absorpci v závislosti na teplotě vzorku, vlnové délce a intenzitě použitých laserových pulsů. Změřená data ukazují, že pro pozorování indukované absorpce je výhodné použít laserové pulsy s nízkou excitační intenzitou a velkou energií fotonů $h\nu$. Zajímavým jevem je zejména to, že jak saturace absorpce, tak i indukovaná absorpce závisí silně na smyslu točivosti kruhové polarizace, a jsou tedy určitým způsobem spojené se spinově polarizovanými elektrony. Námi dosažené výsledky jsou v soulase s experimenty v polovodiči GaAs publikovanými v minulém roce, kde byla saturace absorpce interpretována jako plnění fázového prostoru a indukovaná absorpce byla přisouzena spinově citlivým mnohačasticovým efektům. Naše výsledky dále prokázaly, že tato indukovaná absorpce je podstatně silnější v CdTe než v GaAs.

V této práci jsme se také zaměřili na určení charakteristických dob, které popisují spinovou relaxaci. Při teplotě 20 K jsme zjistili, že excitony si uchovávají svou spinovou orientaci po dobu přibližně 60 ps , zatímco pro volné elektrony je tato doba kolem 150 ps . Rychlejší spinová relaxace excitonů je způsobena tím, že exciton ztrácí svou spinovou orientaci nejen změnou spinu elektronu, ale také otočením spinu díry nebo elektronu i díry současně. Při zvýšení teploty vzorku na 300 K došlo ke zkrácení této charakteristické doby pro elektrony na přibližně 40 ps (určení této doby pro excitony nebylo při 300 K možné z důvodu jejich tepelné disociace). Pozorované zrychlení doby spinové relaxace bylo vyvoláno dosud nespécifikovaným spinově-relaxačním mechanismem, jehož vliv byl za nízké teploty potlačen. Identifikace rozhodujících spinově-relaxačních mechanismů v CdTe je v současné době předmětem našeho dalšího studia. Po stránce experimentální je zejména nutné podrobně změřit teplotní závislosti spinové relaxace ve vzorcích s různou koncentrací a typem dopování. Provedené experimenty jasně ukazují, že pro elektrony i excitony je doba spinové koherence podstatně (30 až 500 krát) delší než doba orbitální koherence, což ukazuje na její přitažlivost pro aplikace, kde je dlouhá koherenční doba důležitá (jako je například oblast kvantového počítání).

V závěru diplomové práce jsme se věnovali modelování intenzitní závislosti dynamik diferenciální propustnosti změřené při teplotě 300 K , které vypovídají o dynamice volných nosičů náboje ve studovaném vzorku CdTe. Navrhli jsme a numericky řešili postupně tři modely, kterými jsme se snažili objasnit experimentální výsledky. Na základě této analýzy jsme dospěli k závěru, že pro dynamiku volných elektronů není rozhodující bimolekulární ani Augerova rekombinace, ale povrchová rekombinace, přičemž velice důležitou roli zde hraje také difúze nosičů náboje.

10 Přílohy

10.1 Měření pomocí fázově citlivé detekce (Lock-in)

Měření slabých zašuměných signálů je poměrně rozsáhlá a komplikovaná problematika. Zde se budeme zabývat vybranými aplikacemi tzv. fázově citlivé detekce (FCD) v experimentech excitace a sondování.

Co vlastně znamená fázově citlivá detekce? Uvažme střídavý signál na frekvenci ω_0 . Pokud se jedná o harmonickou funkci v čase, pak tento signál lze popsat vztahem (10.1).

$$I(t) = I_0 \sin(\omega_0 t + \varphi_0) \quad (10.1)$$

Fázově citlivá detekce znamená, že detekujeme pouze signál na frekvenci ω_0 a na této frekvenci navíc vybíráme pouze signál s fází φ_0 . Jaká je motivace tohoto způsobu detekce? Každé měření je zatíženo šumem, který se v ideálním případě projeví stejnou měrou na všech frekvencích a na každé frekvenci se projevuje náhodně proměnnou fází. Metodou fázově citlivé detekce tedy odfiltrujeme všechny signály na odlišné frekvenci, než je frekvence měřeného signálu ω_0 . A navíc na příslušné frekvenci ω_0 potlačíme nebo zcela eliminujeme signály s odlišnou fází než je φ_0 ⁷.

Jak realizovat výše uvedené filtrování signálu, který má příslušnou frekvenci a fází? Zde se nabízí přímé využití Fourierovy transformace, která je v metodě fázově citlivé detekce realizována lock-inem. Neboli signál vstupující do lock-inu je převeden na Fourierovu transformaci a lock-inem měřená hodnota je fourierovská komponenta na zadané frekvenci a fází.

Určení frekvence, na které je potřeba detekovat signál je poměrně snadné. Optickým přerušovačem budeme přerušovat laserový svazek. Frekvenci přerušování nastavíme na ω_1 . Tím pádem víme, že signál musíme detekovat na frekvenci ω_1 . Tuto hodnotu frekvence přerušování signálu musíme definovaně zprostředkovat lock-inu (tj. analyzátoru Fourierovy transformace). Toto lze realizovat dvěma způsoby. První, ten jednodušší, je pouhé nastavení této frekvence na řídicím panelu lock-inu. Tím řekneme, že chceme detekovat na frekvenci ω_1 . Nevýhodou je, že přerušovač nemá v čase stabilní frekvenci⁸. To znamená, že frekvence, na které je náš signál, se neustále mění. My ale detekujeme stále na jedné frekvenci (neboť jsme ji napevno nastavili), a tudíž přicházíme o část signálu.

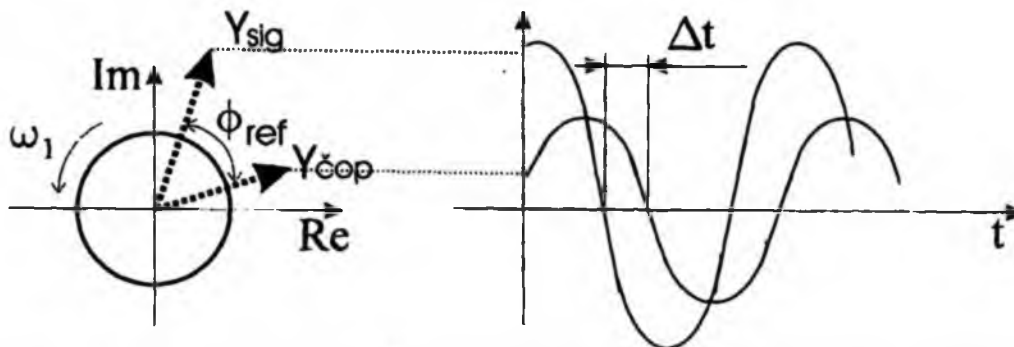
Jak tedy eliminovat tuto chybu? Řešení je jednoduché. Budeme měřit neustále frekvenci přerušování a tento signál budeme zavádět do lock-inu. Neboli toto je informace o okamžité frekvenci ω_1 , na které je v danou chvíli potřeba detekovat měřený signál. Tomuto signálu se říká signál referenční a v lock-inu se tak automaticky mění frekvence, na které se má provádět detekce signálu.

Nyní jsme vyřešili nastavení referenční frekvence. Nastavení referenční fáze je následující. Do lock-inu nám v tuto chvíli vstupují dva signály. Signál z přerušovače, který nám definuje okamžitou frekvenci přerušování svazku ω_1 a měřený signál z detektoru přerušovaný také na ω_1 . Pokud by se oba tyto signály šířily do lock-inu nekonečnou rychlostí, pak je zřejmé, že by do lock-inu dorazily ve stejný čas, neboli ve fázi. Oba signály se však šíří konečnou rychlostí, a protože se oba šíří jinými cestami, dostanou se do lock-inu ve vzájemném zpoždění. Toto zpoždění je dáno především pomalou elektronikou. Znázorníme-li si signál z detektoru a signál z přerušovače ve fázovém diagramu jako dva fázory, pak referenční fáze je úhel právě mezi těmito dvěma fázory (viz obrázek 10-1). Pokud určíme zpoždění Δt mezi oběma signály, pak je zřejmé, že pro referenční úhel φ_{ref} platí $\varphi_{ref} = \omega_1 \Delta t$.

⁷ Takto zcela odfiltrujeme pouze signály, jejichž fáze je posunutá o $\pm\pi/2$ oproti fázi měřeného signálu. Signály, které mají jinou fází pouze potlačíme, resp. v případě, že signál šumu má shodnou fází s fází měřeného signálu, pak signál šumu touto metodou odstranit nelze.

⁸ Frekvence přerušování se mění až o $\pm 1\%$ při frekvenci 2 kHz.

Tímto jsme problém určení referenční fáze převedli na problém určení časového zpoždění mezi signálem z detektoru a referenčním signálem (signálem z přerušovače).



Obrázek 10-1: Význam referenční fáze. Y_{sig} ...fázor znázorňující detekovaný signál, Y_{ref} ...fázor signálu z přerušovače (čopru), ϕ_{ref} ...referenční fáze.

Předtím, než dokončíme určení referenční fáze, tak je právě zde vhodné přejít od poněkud intuitivního popisu principu FCD k jejímu vyjádření pomocí Fourierovy transformace (FT). Máme-li reálný signál, jehož Fourierovu transformaci chceme určit, musíme si nejdříve určit časovou nulu. V našem případě FCD si nejdříve definujeme časovou nulu referenčním signálem. Provedeme-li FT, pak v přítomnosti signálu na ω_1 zjistíme, že fourierovská komponenta má na frekvenci ω_1 nenulovou velikost a obecně nenulovou fázi. Tento fázor odpovídá fázoru měřeného signálu a jeho fáze je právě fáze referenční. Toto tvrzení může být na první pohled poněkud nejasné, proto jej shrnu do několika základních bodů:

- 1) Referenčním signálem jsme si definovali časovou nulu.
- 2) Referenční a měřený signál jsou ve vzájemném zpoždění Δt , tj. ve fázi o ϕ_{ref} .
- 3) Provedeme FT měřeného signálu.
- 4) Jednou z vlastností FT je: $F(f(t-\Delta t)) = e^{-2\pi i \Delta t f} F(f(t))$.

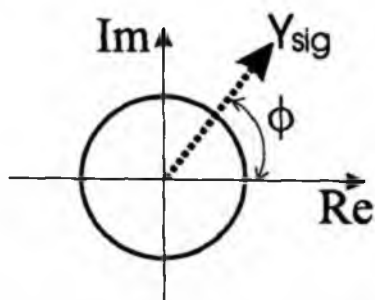
Argument FT reálné periodické funkce posunuté o Δt mimo časovou nulu nám tedy určuje ϕ_{ref} . Neboli již víme, kde hledat náš signál. Na frekvenci ω_1 s fází ϕ_{ref} . Nyní bychom mohli začít měřit. Měřili bychom fourierovskou komponentu na ω_1 (reálnou i imaginární část) a pomocí znalosti úhlu ϕ_{ref} od fázoru referenčního signálu bychom si dopočítali měřený signál. To je poněkud nepraktické. Víme, že hodnota, kterou chceme určit je jedno číslo⁹ a zde bychom měřili dvě čísla ($|Y_{sig}|$, ϕ_{ref}). Proto se provádí procedura tzv. chycení fáze. Předtím je vhodné změnit souřadný systém, ve kterém uvažujeme fázory referenčního a měřeného signálu. Vše budeme sledovat z pohledu referenčního signálu, kterým si tímto definujeme reálnou osu komplexní roviny (viz obrázek 10-2). V této komplexní rovině již fázory nerotují s frekvencí ω_1 , jejich fáze jsou v čase konstantní (to platí v ideálním případě).

Procedura chycení fáze tedy neznamená nic jiného, než že od argumentu fázoru měřeného signálu budeme odčítat úhel ϕ . To mimo jiné znamená, že fázor Y_{sig} překloupíme do reálné osy (viz obrázek 10-2). Při experimentální realizaci chytáme fázi na rozptýlený signál excitačního svazku. Rychlost šíření světla je oproti rychlosti šíření elektrických signálů nekonečná. Proto detekci rozptýlené excitace lze jednoduše určit časový rozdíl příchodu referenčního signálu a signálu jdoucího z detektoru do lock-inu¹⁰.

⁹ Měřená veličina může být popsána i dvěma čísly. To v případě, že fáze měřeného signálu se v čase mění vzhledem k fázoru referenčního signálu. Tato změna fáze může být způsobena např. tepelnými efekty, nabíjením vzorku apod.

¹⁰ V lock-inu však neměříme tento čas, ale referenční úhel ϕ_{ref} . Mezi těmito veličinami platí vztah $\phi_{ref} = \omega_1 \Delta t$, kde ω_1 je frekvence přerušování svazku ($[\omega_1] = \text{rad s}^{-1}$).

Toto byl slovní popis matematických transformací, které se provádí s měřeným signálem. Jejich interpretace je jednoduchá. Na začátku jsme uvedli, že měřený a referenční signál jsou ve vzájemném časovém zpoždění. Chycením fáze jsme neprovedli nic jiného, než že jsme oba signály natakli do stejné časové nuly. Po proceduře chycení fáze tedy již měřený a referenční signál nejsou vzájemně časově zpožděné. Budeme-li měřit reálnou fourierovskou komponentu, pak budeme přímo měřit námi hledaný signál. Je potřeba si uvědomit, že takto určený signál je pouze velikost signálu jdoucího z detektoru, neboli velikost reálného signálu ve voltech. Metodě určení velikosti fyzikální veličiny diferenciální propustnosti $\Delta T/T_0$ jsou věnovány kapitoly 10.1.2 a 10.1.3.



Obrázek 10-2: Statický souřadný systém, ve kterém určujeme fourierovské komponenty měřeného signálu. Fázor Y_{sig} je zde zobrazen před chycením fáze. Po chycení fáze bude tento fázor překllopen do reálné osy.

10.1.1 Vybrané vlastnosti Fourierovy transformace

Před popisem konkrétního využití FCD v experimentech excitace a sondování zde zopakujeme základní vztahy a definice Fourierovy transformace.

Definice Fourierovy transformace funkce $f(t)$.

$$F[f(t)](\nu) = F(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} f(t) e^{-2\pi i \nu t} dt \quad (10.2)$$

Inverzní Fourierova transformace

$$f(t) = \int_{-\infty}^{\infty} F(\nu) e^{2\pi i \nu t} d\nu \quad (10.3)$$

Fourierova transformace funkce posunutá v čase o Δt .

$$F[f(t - \Delta t)](\nu) = e^{-2\pi i \nu \Delta t} F[f(t)](\nu) \quad (10.4)$$

Fourierova transformace je lineární operátor, neboli pro funkce f, f_1, f_2 platí:

$$\begin{aligned} F(f_1) + F(f_2) &= F(f_1 + f_2) \\ F(af) &= aF(f), \quad a \in \mathbb{C} \end{aligned} \quad (10.5)$$

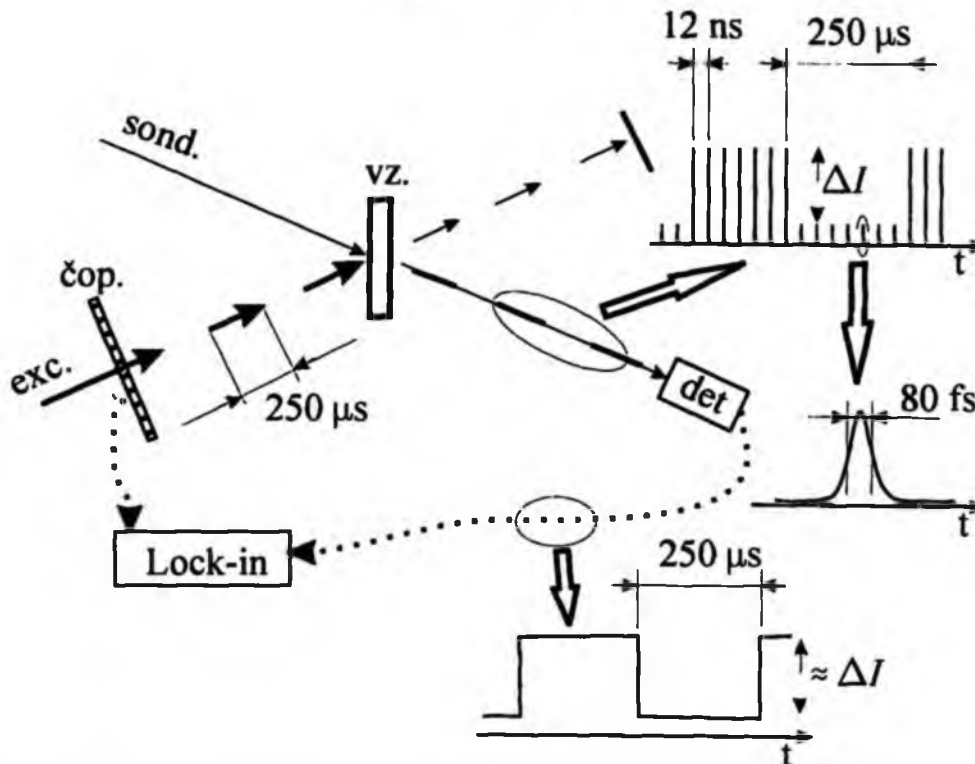
10.1.2 Měření na základní frekvenci

Zde se budeme zabývat problémem, jak určit skutečnou velikost diferenciální propustnosti $\Delta T/T_0$ měřenou v experimentech excitace a sondování. Měření na základní frekvenci je nejrozšířenější způsob měření na principu fázově citlivé detekce.

Experimentální uspořádání je jednoduché (viz obrázek 10-3). Optický přerušovač vložíme do excitačního svazku, který přerušujeme na frekvenci ω_1 . Detektorem snímáme signál z nepřerušovaného sondovacího svazku. Ve skutečnosti je ale sondovací svazek také modulován s frekvencí ω_1 , neboť sondovací svazek procházející vzorkem cítí v přítomnosti excitačního svazku propustnost T , ale bez přítomnosti excitačního svazku propustnost T_0 (viz obrázek 10-3).

Podíváme se nyní detailně na sondovací svazek, který měříme. Mějme před vzorkem sondovací svazek o intenzitě I_{in} . Časovou závislost okamžité intenzity světelného pole lze vyjádřit jako součin obálky dané intenzitou I_{in} a jednotkové funkce charakterizující pulzy I_{pulz} , tj. vztahem (10.6). Předpokládáme zde gaussovský tvar pulzů s délkou τ_p , přičemž jednotlivé pulzy jsou od sebe vzdáleny $t_n - t_{n-1} = 12 \text{ ns}$.

$$I(t) = I_{in} \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{-\left(\frac{t-t_n}{\tau_p}\right)^2} = I_{in} I_{pulz} \quad (10.6)$$



Obrázek 10-3: Schéma experimentálního uspořádání a princip měření na základní frekvenci. Vysvětlivky: sond...sondovací svazek, exc...excitační svazek, čop...čop (optický přerušovač), vz...vzorek, det...detektor. Dále jsou v obrázku schématicky uvedeny časové průběhy intenzity laserových pulzů před detektorem a vystředovaný signál, který měří detektor. Pro srovnání časových škál jsou uvedeny přibližné hodnoty trvání period jednotlivých signálů a délka femtosekundových pulzů (80 fs). Časová odlehlost jednotlivých femtosekundových pulzů je zhruba 12 ns (závisí na opakovací frekvenci laseru) a excitační svazek je přerušován s periodou zhruba 500 μs (závisí na frekvenci otáčení přerušovače).

Po průchodu sondovacího svazku vzorkem s přítomností přerušovaného excitačního svazku je již tato intenzita dána vztahem (10.7).

$$I(t) = I_{in} (T_0 + \Delta T I_E^0(t)) \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{-\left(\frac{t-t_n}{\tau_p}\right)^2} \quad (10.7)$$

Kde funkce $I_E^0(t)$ je definována hodnotou 1, pokud jsou ve vzorku přítomny zároveň excitační i sondovací svazek, a hodnotou 0 pokud je ve vzorku přítomen pouze svazek sondovací. Tato intenzita vstupuje do detektoru. Detektor však není natolik rychlý, aby viděl jednotlivé pulzy. Je ale dostatečně rychlý, že vidí změny intenzity způsobené přerušováním svazku. Jinak řečeno, detektor středuje funkci (10.7) přes časy mnohem delší, než je trvání pulzů ale přes časy mnohem kratší, než je perioda přerušování svazku. Detektor tedy sleduje intenzitu I_{det} danou vztahem (10.8).

$$I_{det}(t) = I_{in}(T_0 + \Delta T I_E^0(t)) \left\langle \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{-\left(\frac{t-t_n}{\tau_p}\right)^2} \right\rangle \quad (10.8)$$

$\tau_p \ll \text{střední délka přerušování}$

Pokud detektor pracuje v lineárním režimu, pak převádí intenzitu I_{det} lineárně na napětí $U(t)$. Toto napětí $U(t)$ zpracovává lock-in jako měřený signál a lze jej vyjádřit pro jednoduchost vztahem (10.9). V konstantě α jsou zahrnuty střední hodnota a intenzita I_{in} ze vztahu (10.8) a konstanta úměrnosti mezi intenzitou $I_{det}(t)$ světelného pole a napětím $U(t)$.

$$U(t) = \alpha (T_0 + \Delta T I_E^0(t)) \quad (10.9)$$

Jak již bylo řečeno v úvodu této kapitoly, lock-in měří Fourierovu transformaci vstupujícího signálu $U(t)$. Fourierova transformace časové funkce (10.9) je $F(U) = \alpha T_0 \delta(0) + \alpha \Delta T F(I_E^0)$. Funkce $\delta(0)$ je Diracova delta funkce na nulové frekvenci. Lock-in ale počítá pouze fourierovskou komponentu na frekvenci přerušování ω_1 , neboli při vstupu funkce (10.9) ukáže lock-in hodnotu Y_{sig} . (10.10).

$$Y_{sig} = \alpha \Delta T F[I_E^0](\omega_1). \quad (10.10)$$

Pokud jsme při měření měli správně chycenou fázi, pak $Im(Y_{sig}) = 0$.

Nyní provedeme obdobné měření s tím, že vypneme excitační svazek a budeme přerušovat pouze svazek sondovací. Je zřejmé, že napětí vstupující do lock-inu bude mít časový průběh (10.11).

$$U(t) = \alpha T_0 I_E^0(t) \quad (10.11)$$

Funkce $I_E^0(t)$ je stejná jako při přerušování excitačního svazku. Rozdíl je pouze v definování, kdy nabývá hodnoty 1 a 0. Hodnoty 1 nabývá v přítomnosti sondování na vzorku, hodnoty 0 pokud je sondování blokováno přerušovačem. Je to tedy z matematického hlediska funkce identická s příslušnou funkcí užívanou při přerušování excitace.

Provedeme opět Fourierovu transformaci a obdržíme fourierovskou komponentu na frekvenci ω_1 (10.12).

$$Y_{sig.sond} = \alpha T_0 F[I_E^0](\omega_1) \quad (10.12)$$

Pokud jsme měli správně chycenou fázi, pak opět platí $Im(Y_{sig}) = 0$ a navíc $Re(Y_{sig}) > 0$. Chycením fáze totiž překloupíme fázor Y_{sig} do reálné osy, čímž měříme až na znaménko přímo jeho velikost. S uvážením znaménka¹¹ ve výrazu (10.10) můžeme pro podíl fázorů Y_{sig} a $Y_{sig.sond}$ změřených při přerušování excitačního resp. sondovacího svazku psát vztah (10.13).

$$\frac{Y_{sig}}{Y_{sig.sond}} = \frac{\alpha \Delta T F(I_E^0)}{\alpha T_0 F(I_E^0)} = \frac{Re(\alpha \Delta T F(I_E^0))}{Re(\alpha T_0 F(I_E^0))} = \frac{\Delta T}{T_0} \quad (10.13)$$

Toto je fundamentální závěr pro měření absolutní hodnoty signálu diferenciální propustnosti v experimentu excitace a sondování při přerušování excitačního svazku. Změříme-li signál s přerušovaným excitačním svazkem a zvláště signál s přerušovaným sondovacím svazkem, pak podílem těchto dvou čísel získáme hodnotu diferenciální propustnosti $\Delta T/T_0$.

10.1.3 Měření na součtové frekvenci

Vedle výše uvedené metody měření na základní frekvenci (ω_1), kde jsme přerušovali pouze excitační svazek, je možné přerušovat jak excitační (ω_1), tak sondovací (ω_2) svazek a měření provádět na součtové frekvenci ($\omega_1 + \omega_2$).

¹¹ Kladné znaménko odpovídá $\Delta T > 0$, tj. saturace absorpce, záporné znaménko $\Delta T < 0$, tj. indukovaná absorpce.

Pro tento účel je přerušovač rozdělen na dva kruhy. Ve vnějším kruhu se nachází 30 zářezů, ve vnitřním 25. Neboli otáčí-li se přerušovač s frekvencí ω , pak poměr frekvencí svazků přerušovaných vnějším/vnitřním kotoučem je $\omega_1/\omega_2=6/5$.

Pro popis signálu $U(t)$ vstupujícího do lock-inu si zavedeme dvě funkce, které budou mít obdobný význam jako v předchozí kapitole.

- 1) funkce $I_E^0(t)$...je rovna 1, pokud vzorkem prochází excitační svazek a je rovna 0, pokud je excitační svazek blokován přerušovačem. Tato funkce je periodická s periodou $T_1=2\pi/\omega_1$.
- 2) funkce $I_S^0(t)$...je rovna 1, pokud vzorkem prochází sondovací svazek a je rovna 0, pokud je sondovací svazek blokován přerušovačem. Tato funkce je periodická s periodou $T_2=2\pi/\omega_2$.

V řeči funkcí $I_E^0(t)$ a $I_S^0(t)$ lze napsat vztah pro signál vstupující do lock-inu ve tvaru (10.14).

$$U_{E.S.}(t) = \alpha(T_0 I_S^0(t) + \Delta T I_S^0(t) I_E^0(t)) \quad (10.14)$$

První člen ve vztahu (10.14) popisuje, že do detektoru neustále proudí přerušovaný sondovací signál na frekvenci ω_2 . Druhý člen popisuje, co se děje s propustností vzorku v případě, že vzorkem prochází zároveň excitační i sondovací svazek. Propustnost se v takovém případě změní o ΔT .

Lock-in provede Fourierovu transformaci vztahu (10.14), která má tvar (10.15). Konkrétně lock-in zobrazí její komponentu na součtové frekvenci. Tento fázor si označíme Y_1 . ($Y_1 = F(U_{E.S.})(\omega_1 + \omega_2)$).

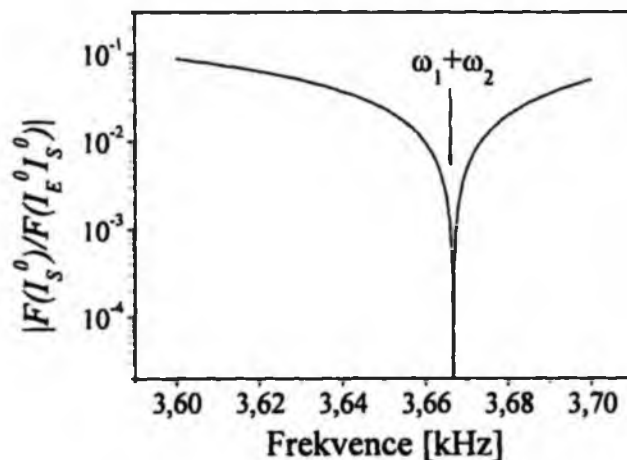
$$F(U_{E.S.}) = \alpha(T_0 F(I_S^0) + \Delta T F(I_S^0 I_E^0)) \quad (10.15)$$

Je zřejmé, že pro určení poměru $\Delta T/T_0$ potřebujeme znát součin αT_0 . Tuto doplňkovou informaci získáme tak, že zakryjeme excitační svazek. V rovnici (10.15) vypadne druhý člen a máme tím pádem soustavu dvou lineárních rovnic o dvou neznámých αT_0 , $\Delta T/T_0$ (10.16).

$$\begin{aligned} Y_1 &= \alpha T_0 F(I_S^0) + \alpha \Delta T F(I_S^0 I_E^0) \\ Y_2 &= \alpha T_0 F(I_S^0) \end{aligned} \quad (10.16)$$

Členem Y_2 jsme označili lock-inem změřený fázor při zakrytí excitačního svazku. Řešením soustavy (10.16) je hledaná změna diferenciální propustnosti (10.17).

$$\frac{\Delta T}{T_0} = \left(\frac{Y_1}{Y_2} - 1 \right) \frac{F[I_S^0](\omega)}{F[I_S^0 I_E^0](\omega)} \Big|_{\omega=\omega_1+\omega_2} \quad (10.17)$$



Obrázek 10-4: Velikost podílu Fourierových transformací $F(I_S^0)/F(I_S^0 I_E^0)$ vystupující ve výrazu (10.17). Podíl Fourierových transformací je spočítán pro konkrétní frekvenci přerušování excitačního svazku 2 kHz a poměr frekvence přerušování excitační/sondování 6/5.

Z obrázku 10-4 a vztahu (10.17) je zřejmý princip měření na součtové frekvenci. Neboť diferenciální propustnost $\Delta T/T_0$ nabývá konečných hodnot (nejčastěji kolem jednotek procent, tj. cca 0,01) a podíl Fourierových transformací ve vztahu (10.17) se blíží v limitě k nule, pak podíl velikostí signálu s excitací a bez excitace musí nabývat velkých hodnot, tj. $Y_1/Y_2 \gg 1$. To nám umožňuje měřit na součtové frekvenci.

Ve skutečnosti ale podíl Y_1/Y_2 není nikdy tak velký, jak by plynulo ze vztahu (10.17). To je pravděpodobně způsobeno tím, že referenční signál, který si lock-in vyrábí pro výpočet fourierovské komponenty na příslušné frekvenci není dokonale harmonický. To pak znamená, že výsledná hodnota, kterou obdržíme jako fourierovskou komponentu na frekvenci $\omega_1 + \omega_2$ je vystředované fourierovské spektrum přes těsné okolí frekvence $\omega_1 + \omega_2$. Čím kvalitnější je tedy příslušný referenční signál, tím užší je spektrální oblast, ze které se středuje příslušná fourierovská komponenta.

Nastíním zde dvě jiné metody určení velikosti $\Delta T/T_0$, které vycházejí ze vztahu (10.15). Ve vztahu (10.15) je první člen zanedbatelný, a to díky fourierovské komponentě $F(I_S^0)(\omega_1 + \omega_2)$. Přerušovač je totiž konstruován tak, aby se frekvence ω_1 a ω_2 neprojevovaly na frekvenci součtové. V přítomnosti obou svazků tedy změříme hodnotu

$$F(U_1) = \alpha \Delta T F(I_S^0 I_E^0). \quad (10.18)$$

Je zřejmé, že pro určení $\Delta T/T_0$ potřebujeme změřit navíc hodnotu

$$F(U_2) = \alpha T_0 F(I_S^0 I_E^0). \quad (10.19)$$

Tento výraz říká, že musíme měřit lineární propustnost pouze v případě, že jsou přítomny jak excitační, tak sondovací svazek.

Jednou z technik, jak měřit lineární propustnost pouze v přítomnosti excitačního i sondovacího svazku, je užití optické závěrky. Vložíme-li před vzorek optickou závěrku, která se bude otevírat excitačním svazkem, pak při přerušování obou svazků změříme skutečně veličinu $F(U_2) = \alpha T_0 F(I_S^0 I_E^0)$. Problém je v realizaci této myšlenky. Je zde totiž nutné zajistit překryv svazků na optické závěrce, čímž ztratíme překryv na vzorku. Pro tento účel je nutné hýbnout s celým excitačním svazkem a hrozí tedy rozjustování celého experimentu.

Mnohem snazší je technika použití dvou přerušovačů v sondovacím svazku. Samotný měřený signál diferenciální propustnosti změříme běžným způsobem měření na součtové frekvenci. Tzn. excitační svazek přerušujeme s frekvencí ω_1 a sondovací s frekvencí ω_2 . Takto změříme veličinu, která je úměrná hodnotě ΔT (dle vztahu 10.18). Určení veličiny $\Delta T/T_0$ je následující. Vypneme-li excitační svazek a budeme přerušovat sondovací svazek dvěma optickými přerušovači (zároveň na frekvencích ω_1 a ω_2), pak signál jdoucí do detektoru bude $U_2 = \alpha T_0 I_S^0 I_E^0$. Což znamená, že lock-inem naměříme hodnotu $F(U_2) = \alpha T_0 F(I_S^0 I_E^0)$. Výsledná hodnota diferenciální propustnosti je pak dána vztahem (10.20).

$$\frac{F(U_1)}{F(U_2)} = \frac{\alpha \Delta T F(I_S^0 I_E^0)}{\alpha T_0 F(I_S^0 I_E^0)} = \frac{\Delta T}{T_0} \quad (10.20)$$

Vztah (10.20) je obdobný vztahu (10.13) při určování hodnoty diferenciální propustnosti při měření na základní frekvenci. Za tímto vztahem se ale skrývá jiná experimentální realizace, která je sice relativně jednoduchá, ale přesto je v praxi proveditelná jen s obtížemi. Problém spočívá v zajištění stabilní frekvence přerušovače svazku, ze kterého nevedeme přímo referenční signál do lock-inu. Tento technický problém lze obejít několika způsoby, jejichž objasnění přesahuje rámec této práce, avšak i tato řešení se nakonec ukazují v praxi velmi těžko aplikovatelná.

10.2 Výpis zdrojového kódu k teoretickému modelu

Dva níže uvedené zdrojové kódy slouží k výpočtu soustavy dvou vázaných obyčejných diferenciálních rovnic prvního řádu (viz kap. 10.2.1) a parciální diferenciální rovnice parabolického typu s Neumannovou hraniční podmínkou (viz kap. 10.2.2). Jedná se o zdrojové kódy skriptů příslušných funkcí v programovém prostředí MatLab. Každý ze zdrojových kódů je poměrně variabilní. Znakem “%” jsou odděleny buď části programu, které nejsou momentálně aktivní nebo komentáře vysvětlující příslušnou proceduru.

10.2.1 Model zahrnující bimolekulární a Augerovy procesy včetně pastí

```
function [doba,DTT0proc]=KinetikaDipPast
(barva,drzeni,parAlfa,parBeta,parB,parNT,parTau,Pexcitace)
global p d vykon paramAlfa paramTau paramNT paramBeta paramB
%-----
tmax=840;
vykon=Pexcitace;
paramAlfa=parAlfa;
paramNT=parNT;
paramTau=parTau;
paramBeta=parBeta;
paramB=parB;
%-----
dtl=(tmax-1)/1000;
tpekryv=[-1:0.001:1];
tza=[1+dtl:dtl:tmax];
t=[tpekryv,tza];

p=1E12; %převodní koeficient cm3 -> 1012 cm3 a zároveň sekundy na pikosekundy
N0=[0 0]; %počáteční hodnota koncentrace elektronů ve vodivostním pásu 1012 cm-3
sig=2.7E-15; %účinný průřez absorpce na volných nosičích [cm2]
d=0.0002; %tloušťka vzorku [cm]

switch drzeni
    case 1
        hold on
    case 0
        hold off
end

options = odeset('RelTol',1e-4,'AbsTol',[1e-5 1e-5]); %nastavení maximálních numerických
povolných chyb při výpočtu
[cas,N] = ode45(@rovnice,t,N0,options); %řešení diferenciální rovnice typu dN/dt=G(t)-N/t-
B*N2-C*N3
doba=cas; %výstup z této funkce
DTT0proc=sig*p*100*d*N(:,1); %výstup z této funkce
%DTT0proc=N(:,1);
%plot(cas,sig*p*100*d*N(:,1),barva) %vykreslení řešení
%title('Dynamika diferenciální propustnosti')
```



```

%xlabel('Zpoždění [ps]')
%ylabel('\Delta T/T_0 [%]')
%set(gca,'YScale','log'); %nastavení logaritmické škály na ose y
%axis([-1-100*dt1 tmax+100*dt1 0.005 5]);
%plot(cas,sig*p*100*d*N(:,2),'-b')

function dN = rovnice(t,N) %definice prave strany dif. rnice
global p d vykon paramAlfa paramTau paramNT paramBeta paramB
T=0.96; %propustnost skla
n=3; %fazovy index lomu materialu
Nsat=14.6E3; % koncentrace saturace absorpcce
tau=paramTau;
NT=paramNT;
beta=paramBeta;
B=paramB; %parametr gama

%-----
Pcw=vykon; %kontinualni vykon laseru [mW]
alfa=paramAlfa; %zachyt elektronu na pastech [ps] z dynamiky na dlouhe skale a min.
intenzite tau=3250ps
%-----

Pcw=Pcw/1000; %prevod vykonu na watty
t0=0; %cas dopadu pulzu [ps]
tauFWHM=0.065; %casova sirka pulzu FWHM [ps]
tp=tauFWHM/(2*log(sqrt(2)));
dgauss=0.0250; %prumer laseroveho svazku na vzorku [cm]
frep=82E6; %opakovaci frekvence laseru [Hz]

ksi=1; %kvantova ucinnost
A=6; %absorbance
lambda=795; %centralni vlnova delka laseru [nm]
hv=(1240*1.602E-19)/lambda; %energie fotonu [J]

I=((T^4)*(1-((n-1)/(n+1))^2)^4*Pcw*p/(pi^(3/2)*(dgauss^2)*frep*tp))*exp(-((t-t0)/tp).^2);
%časová závislost intenzity pulzu [W/cm^2]
G=ksi*A*I/(hv*d*(1+N(1)/Nsat)); %cien generujici volne nosice naboje

dN=zeros(2,1);
dN(1)=G/(p^2)-alfa*N(1)*(NT-N(2))-N(1)/tau+beta*N(2)-B*N(1)*N(1); %definice prave
strany rovnice
dN(2)=alfa*N(1)*(NT-N(2))-beta*N(2);

```

10.2.2 Difúzní model

```
function [cas,Nvysl]=Difuze(parVykon)%(parSig,parNsat,parVykon)
global d p px Nsat vykon

sig=1E-14;
Nsat=1E5;
vykon=parVykon;

m = 0;
N1=50; d1=0.8; %N150
N2=20; d2=(2-d1-d1/N1); %N20
x = [0:d1/N1:d1,d1+d1/N1:d2/N2:2];
t = [-0.5:0.01:1,2:1:50,55:5:800];
%x=[0:0.1:2];
%t=[-1:0.05:1,2:5:800];

p=1E12; %převodní koeficient cm3 -> 1012 cm3 a zároveň sekundy na pikosekundy
px=1E4;
%sig=4*2.7E-15; %účinný průřez absorpce na volných nosičích [cm2]
d=0.0002; %tloušťka vzorku [cm]

sol = pdepe(m,@Rovnice,@PocatecniPodminka,@HranicniPodminka,x,t);
% Vypsání 1.komponenty vektoru u
u = sol(:,1);
%save('reseni','u');

% Vykreslení 3D grafu
%surf(x,t,u)
%title('Dynamika nosičů náboje v CdTe')
%xlabel('Distance x[\mu m]')
%ylabel('Delay t[ps]')
save('TDdoDiplCasy','x','t','u');

PT=size(u(:,1));
PX=size(u(1,:));
PocT=PT(1); %217
PocX=PX(2); %47
N=0*[1:PocT]';
for k=1:N1
    N=N+u(:,k)*d1/N1;
end

for k=(N1+1):(N1+1+N2)
    N=N+u(:,k)*d2/N2;
end
Nvysl=p*N*sig*100/px;
cas=t;

%figure
%semilogy(t,p*N*sig*100/px)
```

```

% Profil řešení
%figure
%plot(x,u(end,:),'-b',x,u(300,:),'-g',x,u(100,:),'-r',x,u(50,:),'-k')
%title('Solution at various times')
%xlabel('Distance x')
%ylabel('u(x)')
%-----
function [c,f,s] = Rovnice(x,t,u,DuDx)
global p d px Nsat vykon
T=0.96; %propustnost skla
n=3; %fazovy index lomu materialu
%Nsat=14.6E3; % koncentrace saturace absorpce [10^2 cm^-3]

%-----
Pcw=vykon; %kontinualni vykon laseru [mW]
%-----

Pcw=Pcw/1000; %prevod vykonu na watty
t0=0; %cas dopadu pulzu [ps]
tauFWHM=0.065; %casova sirka pulzu FWHM [ps]
tp=tauFWHM/(2*log(sqrt(2)));
dgauss=0.0300; %prumer laseroveho svazku na vzorku [cm] FWHM
frep=82E6; %opakovaci frekvence laseru [Hz]

ksi=1; %kvantova ucinnost
A=4; %absorbance
lambda=795; %centralni vlnova delka laseru [nm]
hv=(1240*1.602E-19)/lambda; %energie fotonu [J]
v=300/n; %rychlost svetla ve vzorku při Ngrup=cca n [um/ps]
Dh=5; %difuzni koeficient [cm^2/s]

I0=((T^4)*(1-((n-1)/(n+1))^2)^4*Pcw*p/(pi^(3/2)*(dgauss^2)*frep*tp));
l=I0*exp(-((t-t0)/tp).^2)*exp(-A*x/(d*px)); %časová závislost intenzity pulzu [W/cm^2]
G=ksi*A*I/(hv*d*(1+u(1)/Nsat)); %cien generujici volne nosice naboje
c = 1;
f = (Dh*(px^2)/p)*DuDx;
s = G/(p^2);
%-----
function u0 = PocatecniPodminka(x)
u0 = 0;
%-----
function [pl,ql,pr,qr] = HranicniPodminka(xl,ul,xr,ur,t)
global p px
Srek=1E6;
Srek=px*Srek/p;
pl = -Srek*ul;
ql = 1;
pr = Srek*ur;
qr = 1;

```

11 Literatura

- [1] Z. Burshtein, H. N. Jayathirtha, A. Burger, J. F. Butler, B. Apotovsky, F. P. Doty, *Applied Physics Letters* **63** 102 (1993).
- [2] V. M. Azhazha, V. E. Kutnii, A. V. Rybka, I. N. Shlyakhov, D. V. Kutnii, A. A. Zakharchenko, *Atomic Energy* **92** 508 (2002).
- [3] M. Locker, P. Fischer, S. Krimmel, H. Kruger, M. Lindner, K. Nakazawa, T. Takahashi, N. Wermes, *IEEE Transactions on Nuclear Science* **51** 1717 (2004).
- [4] M. Ohmori, Y. Iwase, R. Ohno, *Materials Science and Engineering B* **16** 283 (1993).
- [5] J. F. Butler, F. P. Doty, B. Apotovsky, J. Lajzerowicz, L. Verger, *Materials Science and Engineering B* **16** 291 (1993).
- [6] J. F. Wanga, S. H. Songa, Y. Ishikawab, M. Isshikia, *Materials Science and Engineering B* **117** 271 (2005).
- [7] A. V. Rybka, L. N. Davydov, I. N. Shlyakhov, V. E. Kutny, I. M. Prokhoretz, D. V. Kutny, A. N. Orobinsky, *Nuclear Instruments & Methods In Physics Research Section A-Accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment* **531** 147 (2004).
- [8] S. J. C. Irvinea, V. Barrioza, A. Stafforda, K. Duroseb, *Thin Solid Films* **76-81** 480 (2005).
- [9] X. Wu, J. C. Keane, R.G. Dhere, C. Dehart, D. S. Albin, A. Duda, T. A. Gessert, S. Asher, D. H. Levi, P. Sheldon, in: *Seventeenth European Photovoltaic Solar Energy Conference, Proceedings of the International Conference, vol. 1, WIP-Munich and ETA- Florence 2001*, p. 995.
- [10] Y. F. Yan, M. M. Al-Jassim, T. Demuth, *Journal of Applied Physics* **90** 3952 (2001).
- [11] G. F. Neumark, *Materials Science & Engineering R-Reports* **21** 1-47 (1997).
- [12] N. Abbas Shah, A. Ali, Z. Ali, A. Maqsood, A.K.S. Aqili, *Journal of Crystal Growth* **284** 477.
- [13] D. J. Chadi, *Physical Review B* **59** 15181 (1999).
- [14] M. S. Petrovic, A. Suchocki, R. C. Powell, G. Cantwell, J. Aldrige, *Journal of Applied Physics* **66** 1359 (1989).
- [15] J. Lee, N. C. Giles, D. Rajavel, C. J. Summers, *Physical Review B* **49** 1668 (1994).
- [16] V. A. Gnatyuk, T. Aoki, M. Niraula, Y. Hatanaka, *Semiconductor Science and Technology* **18** 560 (2003).
- [17] F. Teppe, M. Vladimirova, D. Scalbert, M. Nawrocki, J. Cibert, *Solid State Communications* **128** 403 (2003).
- [18] G. Ghislotti, S. Pietralunga, L. Ripamonti, R. Sacco, S. Micheletti, F. Bosisio, *Journal of Applied Physics* **87** 322 (2000).
- [19] M. Neumann-Spallart, C. Levy-Clementt, G. Grabnert, *J. Phys. D - Appl. Phys.* **27** 407 (1994).
- [20] K. Jarasiunas, P. Delaye, G. Roosen, J.-C. Launay, *Materials Science and Engineering B* **16** 268 (1993).
- [21] T. Feurer, A. Morak, I. Uschmann, C. Ziener, H. Schwoerer, C. Reich, P. Gibbon, E. Forster, R. Sauerbrey, K. Ortner, C. R. Becker, *Physical Review E* **65** Art. No. 016412 (2002).
- [22] T. Shimizu, A. Goto, K. Hashi, S. Ohki, *Superlattices and Microstructures* **32** 313 (2002).
- [23] A. S. Davydov, *Kvantová mechanika*, SPN, Praha (1978)
- [24] P. Nahálková: *Ultrarychlá dynamika nosičů náboje v nanokrystalech CdS, CdSe*, Diplomová práce, MFF UK, Praha, 2003.

- [25] I. Žutić, J. Fabian, S. Das Sarma: *Spintronics: Fundamentals and applications*, Reviews of Modern Physics **76** 323 (2004).
- [26] P. Němec, P. Nahálková, D. Sprinzl, P. Malý: *Polovodičová spintronika a časově rozlišená laserová spektroskopie*, Čs. čas. fyz. **55** 171 (2005).
- [27] A. V. Kimel, V. V. Pavlov, R. V. Pisarev, V. N. Gridnev, F. Bentivegna, T. Rasing, Physical Review B **62** R10610 (2000).
- [28] P. Nahálková, P. Němec, D. Sprinzl, E. Belas, P. Horodyský, J. Franc, P. Hlídek, P. Malý: *Spin Dynamics in Bulk CdTe at Room Temperature*, Materials Science and Engineering B **126** 143 (2006).
- [29] P. Horodyský, P. Hlídek: *Free exciton absorption in bulk CdTe: temperature dependence*, Physica Status Solidi – B **243** 494 (2006).
- [30] P Lemasson, Solid State Communications **43** 627 (1982).
- [31] K. Jarasiunas, V. Gudelis, P. Delaye, G. Roosen, Review of Scientific Instruments **69** 3776 (1998).
- [32] V. V. Matlak, E. S. Nikoniuk, A. V. Savickij, K. D. Tovstynk, Sov. Phys. Semicond. **6** 1760 (1973).
- [33] R. I. Dzhioev, K. V. Kavokin, V. L. Korenev et al., Phys. Rev. B **66** 245204 (2002).
- [34] M. Sudzius, R. Aleksiejunas, K. Jarasiunas, D. Verstraeten, J.-C. Launay, Semiconductor Science And Technology **18** 367 (2003).
- [35] G. Ghislotti, S. M. Pietralunga, L. Ripamonti, Journal of Crystal Growth **214** 212 (2000).
- [36] N. Gouaichault-Brugel, L. Nardo, M. Pugno, J. Collet, Materials Science and Engineering B **16** 309 (1993).
- [37] S. Seto, K. Suzuki, M. Adachi, K. Inabe, Physica B **302** 307 (2001).
- [38] K. Jarasiunas, P. Delaye, J.-C. Launay, G. Roosen, Optical Communications **93** 59 (1992).
- [39] S. Adachia, T. Tsuchiyab, H. Minoc, S. Takeyamac, G. Karczewskid, T. Wojitowiczd, J. Kossutd, Physica E **10** 305 (2001).
- [40] V. Mizeikis, K. Jarasiunas, N. Lovergine, K. Kuroda, Thin Solid Films **364** 186 (2000).
- [41] K. Jarasiunas, L. Bastien, J.-C. Launay, P. Delaye, G. Roosen, Semiconductor Science and Technology **14** 48 (1999).
- [42] I. Ruckmann, M. Petrauskas, V. Netikisis, G. Tamulaitis, J. Halfpap, Phys. Status Solidi B **142** 629 (1987).
- [43] K. Jarasiunas, M. Sudzius, R. Aleksiejunas, K. Shcherbin, Photorefractive Effects, Materials and Devices ed, D. Nolte, G. J. Salamo et al (Washington, DC: OSA), p 246 (2001).
- [44] B. Koopmans, M. van Kampen, W. J. M. de Jonge, Physica Status Solidi B-Basic Research **215** 217 (1999).
- [45] B. Koopmans, J. E. M. Haverkort, G. Karczewski, Journal of Applied Physics **85** 6763 (1999).
- [46] J. Franc, R. Grill, L. Turjanska, P. Höschl, E. Belas, P. Moravec, Journal of Applied Physics **89** 786 (2001).
- [47] V. A. Gnatyuk, T. Aoki, O. S. Gorodnychenko, Y. Hatanaka, Applied Physics Letters **83** 3704 (2003).
- [48] E. Gatskevich, G. Ivlev, P. Přikryl, R. Černý, V. Cháb, O. Cibulka, Applied Surface Science **248** 259 (2005).
- [49] H. J. Eichler, P. Günter, D. W. Pohl: *Laser-Induced Dynamic Gratings*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1985.
- [50] V. L. Vinetskii, N. V. Kukhtarev, S. G. Odulov, M. S. Soskin: Sov. Phys. **22** 742 (1979).

- [51] J. Shah: *Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor structures*. Springer Series in Solid-State Sciences vol 115, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1996.
- [52] L. Banyai, S. W. Koch, Phys. Rev. Lett 57 2722 (1986).
- [53] P. Gilliot, J.C. Merle, R. Levy, M. Robino, B. Honnerlage, Phys. Stat. Sol. (b) 153 403 (1989).
- [54] P. Horodyský, ústní sdělení.
- [55] P. Němec, ústní sdělení.
- [56] P. Němec, Y. Kerachian, H. M. van Driel, A. L. Smirl, Physical Revue B 72 2452002 (2005).
- [57] R. Grill, ústní sdělení.