

ЛАЗЕРНОЕ ФОТОВОЗБУЖДЕНИЕ НЕРАВНОВЕСНЫХ НОСИТЕЛЕЙ В ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ КРИСТАЛЛАХ

С.В. Гарнов, А.С. Елифанов, С.М. Климентов, А.А. Панов, Э.М. Шахвердиев

Проведем теоретический анализ кинетической модели двухфотонного лазерного возбуждения неравновесных носителей в широкозонных диэлектриках с учетом процессов ионизации примесей и различных типов рекомбинации. Приводится сравнение с экспериментальными результатами по лазерной фотопроводимости щелочно-галлоидных кристаллов.

В последнее время большое внимание уделяется изучению собственной фотопроводимости широкозонных диэлектриков, наведенной интенсивным лазерным излучением УФ диапазона. Это связано с двумя важными проблемами физики взаимодействия лазерного излучения с прозрачными твердыми телами — оптическим разрушением и радиационным дефектообразованием, впервые изученным в /1/.

В работе /2/ исследовалась зависимость сигнала фотопроводимости щелочно-галлоидных кристаллов (ЩГК) от интенсивности возбуждающего УФ лазерного излучения наносекундной длительности. Были обнаружены три характерных участка: а) линейной зависимости при низких интенсивностях $J < 5 \cdot 10^4$ Вт/см²; б) зависимости, близкой к квадратичной при $5 \cdot 10^4$ Вт/см² $< J < 5 \cdot 10^6$ Вт/см²; в) линейной зависимости при $J > 5 \cdot 10^6$ Вт/см².

В настоящей работе проводится анализ модели, позволяющей адекватно описать кинетику неравновесных носителей в условиях /2/, когда выполнено условие $2\hbar\omega > E_g$ (где ω — частота лазерного излучения, E_g — ширина запрещенной зоны кристалла), и объяснить наблюдающиеся закономерности в зависимости $n_e(J)$ *.

Показано, что первый линейный участок связан с ионизацией примесей и дефектов необлученного кристалла, в то время как близкая к квадратичной зависимость $n_e(J)$ при средних интенсивностях определяется доминирующей ролью двухфотонного рождения электронно-дырочных пар. Особый интерес представляет выход зависимости $n_e(J)$ на второй линейный участок при высоких интенсивностях. Тот факт, что указанный выход однозначно коррелирует с образованием значительной концентрации F—H центров, а начальная фаза дефектообразования связана с квадратичной электрон-дырочной рекомбинацией, позволяет сделать вывод, что последняя становится основным механизмом рекомбинации при высоких интенсивностях лазерного излучения /3/.

Таким образом, при средних и высоких интенсивностях $J > 5 \cdot 10^4$ Вт/см² происходит рождение электронов и дырок за счет двухфотонного поглощения лазерного излучения. Родившиеся при этом дырки быстро ($t \sim 10^{-13}$ с) автолокализируются, образуя конфигурацию X_2^- , где X — атом галогена. Автолокализованная дырка является необычайно сильным центром рекомбинации. Сечение захвата электрона автолокализованной дыркой $\sigma > 2 \cdot 10^{-14}$ см² /4/. Столь большое значение сечения захвата приводит к тому, что в ЩГК квадратичная рекомбинация становится существенной при относительно низких концентрациях электронов $n_e \approx 10^{14}$ см⁻³ при $J \approx 5 \cdot 10^6$ Вт/см².

Учитывая вышесказанное, запишем систему кинетических уравнений в следующей форме:

$$\begin{aligned} \frac{dn_e}{dt} &= \sigma^{(2)} J^2 n_V - \sigma n_e n_h + \sigma^{ef} n_d J - n_e / \tau_e, \\ \frac{dn_h}{dt} &= \sigma^{(2)} J^2 n_V - \sigma n_e n_h, \quad \frac{dn_V}{dt} \approx 0. \end{aligned} \quad (1)$$

* Так как сигнал фотопроводимости пропорционален концентрации электронов зоны проводимости n_e , в дальнейшем будем говорить о зависимости последней от интенсивности лазерного излучения. Быстрая (за времена $\sim 10^{-13}$ с) автолокализация дырок делает несущественным их вклад в фотопроводимость.

Начальные условия: $n_e(0) = 0$, $n_h(0) = 0$. Приняты следующие обозначения: n_e — концентрация электронов зоны проводимости; n_h — концентрация дырок; $n_v \approx 1,2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3} / 4$ — концентрация валентных электронов; n_d — концентрация примесей (дефектов); $v \approx 10^7 \text{ см/с}$ — скорость электрона; τ_e — время жизни электронов зоны проводимости (время линейной рекомбинации); J — интенсивность лазерного излучения; σ — сечение захвата электрона автолокализованной дыркой; $\sigma^{(2)} \approx 10^{-11} \text{ см}^4 \cdot \text{с} / \text{Дж}^2 / 4$ — сечение двухфотонной ионизации валентных электронов; σ^{ef} — сечение ионизации примесей.

Перейдем к безразмерным величинам. За единицу времени примем время линейной рекомбинации $t' = t/\tau_e$ (далее знак штриха при t опускаем): $x = n/n_0$; $\xi = J/J_0$; $A = \sigma^{ef} n_d \tau_e (\sigma v / \sigma^{(2)} n_v)^{1/2}$; $J_0 = \tau_e^{-1} (\sigma v \sigma^{(2)} n_v)^{-1/2}$; $n_0 = (\tau_e \sigma v)^{-1}$. В итоге из (1) получаем:

$$\begin{aligned} dx_e/dt &= \xi^2 - x_e x_h + A\xi - x_e, \\ dx_h/dt &= \xi^2 - x_e x_h \end{aligned} \quad (2)$$

с начальными условиями $x_e(0) = 0$, $x_h(0) = 0$.

Переход к безразмерным величинам произведен таким образом, что при $\xi = 1$ ($J = J_0$) становятся примерно равными времена линейной и квадратичной рекомбинаций. Величина A физически определяет относительную роль двухфотонной ионизации ионов решетки и однофотонной ионизации примесей при $J = J_0$ (т.е. в области перехода на второй линейный участок в зависимости $n_e(J)$). Если $A < 1$, то, как будет показано ниже, должен наблюдаться участок близкой к квадратичной зависимости $n_e(J)$ при средних интенсивностях. Именно этот случай отвечает достаточно чистым образцам ШГК, использованным в /2/. В противном случае двухфотонная ионизация маскируется ионизацией примесей вплоть до высоких значений интенсивности.

Предположим, в соответствии с условиями /2/, что время линейной рекомбинации на примесях короче длительности импульса ($t_u > 1$) и для простоты ограничимся случаем импульса прямоугольной формы.

Исследуем систему (2) в случае низких интенсивностей $\xi < 1$. Делая замену переменных $x_e = \xi(x + y)$, $x_h = \xi x$, $t_1 = t\xi$, получаем

$$dx/dt_1 = 1 - x(x + y), \quad \xi dy/dt_1 = A - (x + y), \quad (3)$$

причем $x(0) = y(0) = 0$. При исследовании систем уравнений (3), (4) будем следовать методу асимптотических разложений по малому параметру, описанному, например, в /5/.

В первом приближении по ξ получаем:

$$x_e(t) = A\xi + \xi^2 \exp(-A\xi t) - (\xi^2 + A\xi) \exp(-t),$$

$$x_h(t) = \xi/A + \xi(\xi/A^2 - 1/A) \exp(-A\xi t) - (\xi/A)^2 \exp(-2A\xi t) - (\xi^3/A) t \exp(-A\xi t).$$

Функция $x_e(t)$ имеет максимум $x_{e \max} \approx \xi^2 + A\xi$, если $A\xi < 1$, т.е. всегда в наиболее интересном случае $A < 1$. Этот максимум достигается за время $t_{\max} \approx \ln[(\xi + A)/A\xi^2]$. (Внимание к максимуму обусловлено тем, что в эксперименте /2/ речь идет о пиковом значении концентрации электронов.) Таким образом, в случае $\xi < 1$ при $\xi < A$ концентрация электронов определяется однофотонной ионизацией примесей (дефектов), а при $A < \xi < 1$ существенными оказываются процессы двухфотонной ионизации атомов решетки.

В случае высоких интенсивностей ($\xi > 1$), делая замену переменных $x_e = \xi(x + y)$, $x_h = \xi y$ в системе (2), получаем

$$dx/dt = A - (x + y), \quad (1/\xi) dy/dt = 1 - y(x + y), \quad (4)$$

причем $x(0) = y(0) = 0$. В нулевом приближении по $1/\xi$ имеем:

$$x_e(t) = \xi(\text{th} \xi t - 1) + \xi/y(t), \quad x_h(t) = \xi(\text{th} \xi t - 1) + \xi y(t),$$

где $y(t)$ удовлетворяет уравнению

$$(dy/dt)(1 + y^2) = y(1 - Ay), \quad y(0) = 1. \quad (5)$$

Решением уравнения (5) является соотношение

$$At = (1/A + A) \ln[(1 - A)/(1 - Ay)] + A \ln y + (1 - y).$$

Функция $y(t)$ описывает переход от значения $y(0) = 1$ к значению $y(\infty) = 1/A$.

На начальной стадии возбуждения при $t \lesssim 1/\xi$ концентрация электронов определяется квадратичной рекомбинацией электронов и дырок при двухфотонном законе их рождения ($th\xi t$). При $t \sim 1/\xi$ концентрация электронов достигает максимального значения (если $A < 1$) $x_e \max \approx \xi$ (при этом $x_h \approx \xi$) и в дальнейшем ($t > 1/\xi$) x_e медленно стремится к своему стационарному значению $x_e(\infty) = A\xi$. Время перехода $t_{II} \approx 1/A^2$ от $x_e \approx \xi$ к стационарному значению в условиях /2/ значительно превышает длительность импульса. Следовательно для наносекундного импульса стационарное значение не достигается несмотря на то, что время линейной рекомбинации короче длительности импульса. Этот важный вывод объясняет почему формальное стационарное решение системы (2) не соответствует экспериментальным результатам.

Таким образом, рассмотренная кинетическая модель позволяет понять характерную зависимость фотопроводимости от интенсивности УФ лазерного излучения в ЩГК, изученную в /2/.

ЛИТЕРАТУРА

1. Bradford J. N., Williams R. T., Faust W. L. Phys. Rev. Lett., 35, 300 (1975).
2. Горшков Б. Г. и др. ЖЭТФ, 81, 1423 (1981).
3. Kabler M. N., Williams R. T. Phys. Rev. B, 18, 1948 (1978).
4. Brost G., Braünlich P., Kelly P. Phys. Rev. B, 30, 4675 (1984).
5. Тихонов А. Н., Васильева А. Б., Свешников А. Г. Дифференциальные уравнения. М., Наука, 1985, гл. 7, § 2.

Поступила в редакцию 31 октября 1986 г.