

НАВЕДЕННОЕ ОПТИЧЕСКОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ КРИСТАЛЛОВ $KI-Tl^+$
ПОД ДЕЙСТВИЕМ ИНТЕНСИВНОГО ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

П. Г. Баранов, В. П. Данилов, В. И. Жеков, Т. М. Мурина,
Л. Е. Нагли, А. М. Прохоров

УДК 535.37

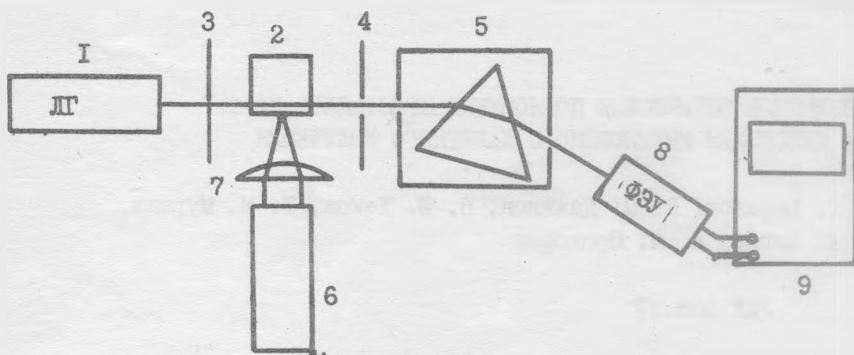
Сообщается об обнаружении сильного наведенного поглощения в кристаллах $KI-Tl^+$ в широкой области спектра при возбуждении в А-полосу интенсивным УФ лазерным излучением.

Исследованы процессы аннигиляции наведенных центров окраски и рассмотрена ионизация ионов Tl^+ .

В работе исследовались щелочно-галогидные кристаллы (ЩК) с примесью ионов Tl^+ ; они выращивались из расплава по методам Стокбаргера и Киропулуса с концентрацией примеси $5 \cdot 10^{17} - 1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$. На установке, блок-схема которой показана на рис. 1, были сняты спектральные и временные зависимости (рис. 2 и рис. 3) наведенного поглощения в кристаллах $KI-Tl^+$. Возбуждение кристаллов осуществлялось излучением эксимерного лазера ($\lambda = 308 \text{ нм}$, $\tau = 15 \text{ нс}$, $E = 15-40 \text{ мДж}$). Излучение накачки фокусировалось линзой на кристалл, через объем которого пропускалось излучение зондирующего пучка $310-623 \text{ нм}$. Интенсивность зондирующего пучка регистрировалась монохроматором СДЛ-1 с помощью ФЭУ-39А на экране осциллографа С8-2.

Разрешающая способность приемного тракта составляла 50 нс. Методика определения оптической плотности аналогична применяемой в ряде работ по исследованию импульсного поглощения (см., например, /1/).

В момент подачи на кристалл интенсивного импульса накачки ($\lambda = 308 \text{ нм}$) появляется наведенное поглощение в широкой области спектра. На рис. 2б приведена осциллограмма импульса наведенного поглощения, на которой видны быстрая и медленная компоненты.

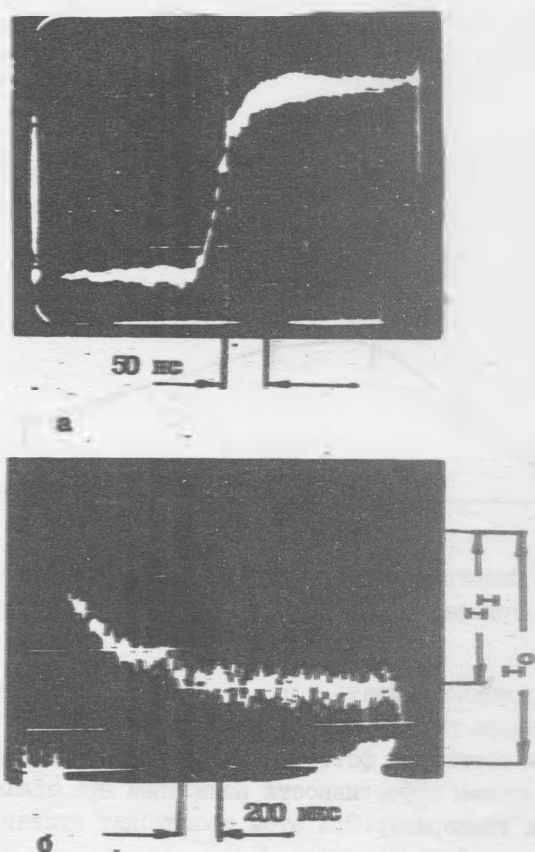


Р и с. 1. Блок-схема установки: 1 - газовый лазер (ЛГ-31), 2 - исследуемый образец, 3,4 - диафрагмы, 5 - монохроматор, 6 - эксимерный лазер, 7 - линза, 8 - фотоэлектронный умножитель, 9 - осциллограф

Медленная спадает за 0,2 с, а быстрая за 0,7 мс при $T = 300$ К. Поглощение определялось из соотношения $I = I_0 - I_1(t)$, где I_0 и $I_1(t)$ - интенсивности прошедшего через кристалл света до и после его облучения соответственно. Одновременно с импульсом поглощения наблюдается спонтанная люминесценция активатора с временем затухания ~ 280 нс и длительное активаторное рекомбинационное свечение, затухающее в течение нескольких секунд.

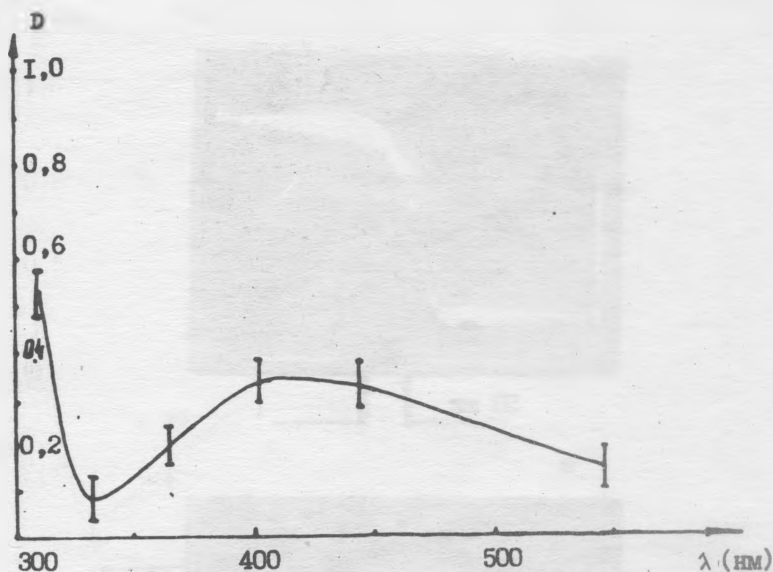
Спектр наведенного поглощения /2/ и кинетика его затухания (рис. 2,3) говорят о том, что при интенсивностях накачки, превышающих 1 МВт/см², в кристалле $KI-Tl^+$ возникают центры окраски: дырочные Tl^{++} , электронные Tl° и F-центры. Появление центров окраски не может быть обусловлено распадом электронных возбуждений, созданных двухфотонным поглощением, так как фронт нарастания наведенного поглощения в этом случае должен был бы составлять несколько микросекунд /3/, в то время как в нашем случае он не превышает 25 нс (рис. 2а).

Возможным механизмом образования Tl^{++} является резонансная двухквантовая ионизация ионов Tl^+ . Потенциал ионизации Tl^+ равен 6,1 эВ /4/. Поэтому двух квантов накачки с энергией 4,02 эВ достаточно (даже с учетом перестройки решетки по ядерным координатам), чтобы перевести ион из основного состояния в область непрерывного спектра. Поскольку энергия квантов накачки к тому же близка к



Р и с. 2. Осциллограммы: а) фронта нарастающей ионизации приципиального поглощения, б) ионизации вращательного поглощения

энергии перехода $1_{A_{1g}} - 3_{E_{2g}}$ то возникает резонансная ситуация, которая может проявиться в резком возрастании сечения двухвалентной ионизации. Длительность импульса пучка существенно меньше времени жизни иона в возбужденном резонансном состоянии, (см.



Р и с. 3. Спектральное распределение оптической плотности введенного в кристалле поглощения D через 1 мс после импульса УФ облучения

довательно, можно ожидать, что имеет место ступенчатая ионизация через РВС иона Tl^{+} . То, что в эксперименте наблюдается резонансная оптическая ионизация фотовозбужденных центров, подтверждается резким падением эффективности ионизации при охлаждении кристалла до азотных температур. При этом происходит сужение спектра поглощения и расстройки резонанса /5/.

Вероятность ионизации возбужденных центров $(Tl^{+})^*$ определялась нами из соотношения:

$$W_i = N_{Tl^{++}} / N_{(Tl^{+})^*} \quad (1)$$

где $N_{Tl^{++}}$, $N_{(Tl^{+})^*}$ - концентрации ионов Tl^{++} и $(Tl^{+})^*$ соответственно, τ - длительность импульса накачки. Число возбужденных ионов Tl^{+} можно определить следующим образом:

$$N_{(Tl^{+})^*} = \alpha (I_p / h\nu) \tau, \quad (2)$$

где α - коэффициент поглощения на длине волны накачки, I_p - интенсивность накачки, $h\nu$ - энергия кванта накачки.

Мы считали, что в основном наведенное поглощение в области 440 нм (длина волны зондирующего луча) обусловлено центрами $Tl^{++}/6/$. Если предположить, что сила осциллятора перехода порядка 0,1, по аналогии с кристаллами $KCl-Tl^{++}$ /7/, то концентрацию Tl^{++} можно оценить по формуле Смакула /8/. Расчет показывает, что $w_1 = 10^6 - 10^7 \text{ с}^{-1}$ и не зависит от концентрации возбужденных $(Tl^+)^*$.

Оценка концентрации F-центров (N_F), проведенная по формуле Смакула, показала, что $N_{Tl^{++}}/N_F \cong 10$. Следовательно, основными центрами захвата электронов в исследованных нами кристаллах являются центры Tl^+ и кинетика затухания наведенного поглощения определяется в основном распадом центров Tl^0 . Здесь возможна следующая ситуация: электрон, оторванный от центра Tl^+ , локализуется на ближайшем центре Tl^+ , так что образуются пары $Tl^{++}-Tl^0$ центров. Обратная рекомбинация происходит без промежуточных захватов. В этом случае кинетика рекомбинации определяется прямым взаимодействием центров $Tl^{++}-Tl^0$ и температурная зависимость уменьшения концентрации центров Tl^{++} может быть представлена следующим образом:

$$D = D_0 \exp(-u/kT), \quad (3)$$

где u - энергия температурной активации центров Tl^0 . С увеличением концентрации активатора растет вероятность промежуточного перехвата электрона на других Tl^+ -центрах до их рекомбинации с Tl^{++} -центром. В этом случае кинетика уменьшения концентрации Tl^{++} -центров сложнее и уже не будет определяться выражением (3). Эксперименты показали, что при концентрации ионов $Tl^+ \sim 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ распад Tl^{++} -центров происходит по экспоненциальному закону с характерным временем уменьшения оптической плотности $\tau \sim 0,7 \text{ мс}$ при 290 К. С увеличением концентрации ионов Tl^+ появляется и растет составляющая D_∞ , значительно более медленно затухающая, которую можно аппроксимировать экспонентой с $\tau \sim 200 \text{ мс}$.

Температурная зависимость быстрой части наведенной оптической плотности оказывается линейной функцией в координатах $\ln \tau$,

Т. При этом энергия активации $E = 0,49 \pm 0,05$ эВ, что хорошо совпадает с энергией термического разрушения Tl^+ -центров [9]. Следовательно, быстрая часть экспоненты уменьшения оптической плотности Tl^{++} -центров связана с мономолекулярной рекомбинацией термически освобожденных электронов с Tl^+ -центров в парах $Tl^{++}-Tl^+$. Медленная часть изменения оптической плотности Tl^{++} -центров, по-видимому, связана с бимолекулярной рекомбинацией на Tl^+ -центрах электронов, освобожденных с Tl^+ и F-центров.

Приведенные результаты позволяют утверждать, что в кристаллах $KI-Tl^+$, помимо известных процессов ионизации ионов Tl^+ , существует прямая оптическая ионизация с вероятностью порядка 10^{-2} , которая становится наблюдаемой при интенсивностях накачки $I = 20$ МВт/см². Механизм обратной рекомбинации в зависимости от концентрации активатора носит как мономолекулярный так и бимолекулярный характер.

Поступила в редакцию
25 января 1980 г.

Л и т е р а т у р а

1. Phys. of Color Centers, ed. by W. B. Fowler, Academ. Press, New-York, 1968, p. 257.
2. Minoru Itoh, T. Momi-E, K. Nakamura, Y. Nakai, J. Phys.Soc. Jap., 41, 2052 (1976).
3. H. B. Dietrich, A. E. Puraday, R. B. Murray, R. T. Williams, Phys. Rev., B8, 5894 (1973).
4. Charlotte E. Moore, Atomic Energy Levels, v. III, 1958.
5. Y. Uchida, J. Phys. Soc. Jap., 24, 1075 (1968).
6. P. A. Кинк, Труды ИФА АН ЭССР, 39, 162 (1972).
7. C. Delbecq, A. K. Choschi, Phys. Rev., 151, 599 (1966).
8. Ф. Зейтц, Современная теория твердого тела, ИЛ, М., 1948 г.
9. П. А. Кулис, Ученые записки ЛГУ 4, III (1975).