

ТРЕХ- И ЧЕТЫРЕХФОТОННЫЕ ПРОЦЕССЫ ВОЗБУЖДЕНИЯ НЕРАВНОВЕСНЫХ НОСИТЕЛЕЙ В ШИРОКОЗОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

*С.В.Гарнов, А.С.Епифанов, С.М.Климентов,
А.А.Маненков, А.М.Прохоров*

Обнаружены трех- и четырехфотонные процессы межзонного возбуждения неравновесных носителей (НН) в NaCl и KCl пикосекундными лазерными импульсами видимого и УФ-диапазона. Определены соответствующие коэффициенты многофотонного поглощения и подвижности электронов в зоне проводимости.

До последнего времени исследования многофотонных ($k > 2$) процессов возбуждения НН в широкозонных диэлектриках (например, щелочно-галлоидных кристаллах (ЩГК)) по существу отсутствовали, несмотря на значительный теоретический и практический интерес, связанный, в частности, с проблемами взаимодействия мощного лазерного излучения с прозрач-

ными материалами. Нам известно лишь две работы, где приводятся данные о наблюдении трех- и четырехфотонных процессов возбуждения НН в ШГК. В ¹ изучалась экситонная люминесценция в KI ($k = 3$), в ² — поглощение света в NaCl фотоакустическим методом ($k = 4$).

Здесь мы сообщаем об обнаружении трех- и четырехфотонных процессов возбуждения НН в NaCl и KCl, методом пикосекундной лазерной фотопроводимости (ФП). При этом нам удалось надежно зарегистрировать и однозначно идентифицировать эти процессы, и измерить с высокой степенью точности соответствующие коэффициенты многофотонного поглощения.

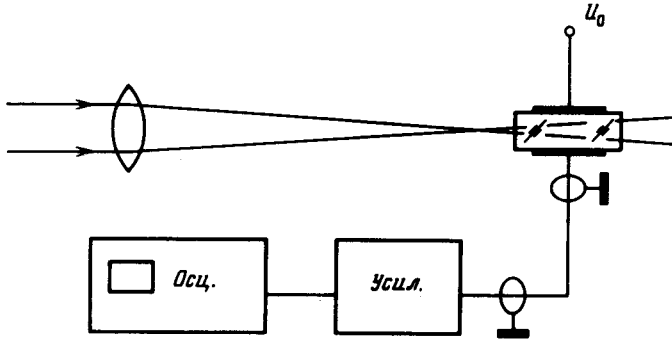


Рис. 1

Используемая в экспериментах схема регистрации ФП приведена на рис. 1. Образцы исследуемых кристаллов размерами $3 \times 15 \times 15 \text{ мм}^3$ помещались между электродами, к которым прикладывалось электрическое поле "колоколообразной" формы длительностью 100 мкс и амплитудой $U_0 = 4 \text{ кВ}$, синхронизированное с возбуждающим излучением — одиночными импульсами четвертой, третьей и второй гармоник пикосекундного YAG-Nd-лазера. Длительность импульсов основной частоты ($\lambda = 1,064 \text{ мкм}$) составляла 60 пс. Съем сигнала ФП производился кабельной линией с волновым сопротивлением $R = 50 \text{ Ом}$. Исследуемый сигнал усиливался широкополосным усилителем и регистрировался на экране скоростного осциллографа. Временное разрешение тракта регистрации составляло 1,5 нс. Все измерения проводились при интенсивностях возбуждающего излучения намного меньших порога лазерного разрушения исследуемых материалов, каждый раз в новом месте кристалла — для исключения существенного влияния на сигнал ФП фотоионизации образующихся F' -центров. Для повышения интенсивности возбуждающего света пучок поджимался длиннофокусной линзой так, что диаметр пятна на передней грани образца составлял $0,5 \div 1 \text{ мм}$. С целью получения пространственно однородных пучков (что принципиально необходимо в такого рода исследованиях), с близким к гауссовому, на всех длинах волн, профилем интенсивности, излучение лазера тщательно фильтровалось в пространственных фильтрах.

Для импульса с распределением интенсивности:

$$I(r, t) = I_0 \exp\left(-\frac{r^2}{r_0^2}\right) \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \quad (1)$$

в случае слабого поглощения, полное число электронов N_k образовавшееся в зоне проводимости в результате k -фотонного возбуждения равно:

$$N_k = \frac{\beta_k}{k\hbar\Omega} \frac{\pi r_0^2 l}{k} \frac{\sqrt{\pi\tau}}{\sqrt{k}} I_0^k \quad (2)$$

Здесь β_k — коэффициент k -фотонного поглощения, Ω — частота света, l — размер области взаимодействия вдоль направления луча. С другой стороны регистрируемое амплитудное значение напряжения сигнала ФП:

$$U_{pc} = \alpha N_k \frac{U_0 \mu e}{L^2} R \varphi\left(\frac{\tau_r}{\tau_x}\right), \quad (3)$$

где μ — подвижность, e — заряд электрона, L — расстояние между электродами, α — коэффициент порядка единицы в приближении плоского конденсатора и описывает отклонение от этого приближения, φ — функция передачи сигнала, τ_r — время рекомбинации электронов, τ_x — время переходной характеристики тракта регистрации. Формула (3) получена методом вложенных изображений, в предположении отсутствия экранировки внешнего поля свободными носителями. В эксперименте уровни возбуждения выбирались такими, что данное условие заведомо выполнялось.

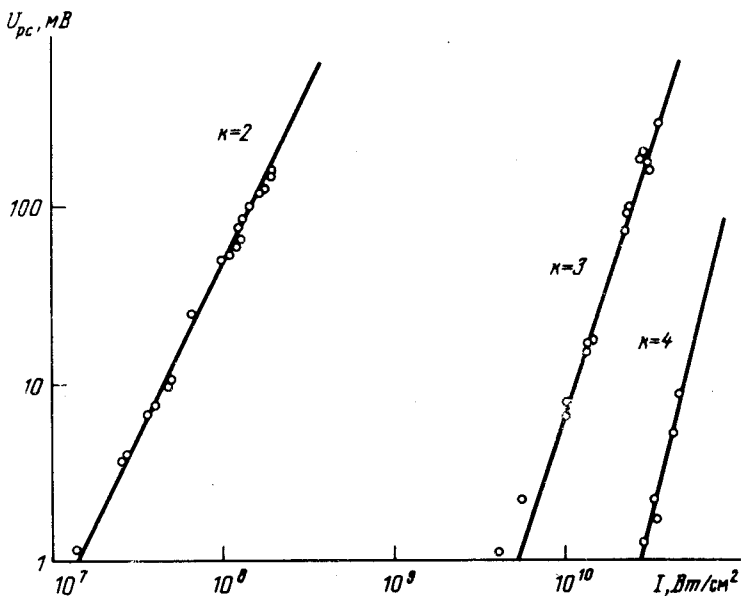


Рис. 2

Сопоставление (2) и (3) позволяет получить выражения для отношений коэффициентов поглощения β_2/β_3 и β_2/β_4 , (зависящие только от пространственно-временных и энергетических параметров возбуждающего излучения) и по экспериментальным зависимостям $U_{pc} = f(I_0)$ определить их значения. На рис. 2 приведены зависимости сигнала ФП КСІ от интенсивности излучения с длиной волны $\lambda = 0,266$ мкм ($k = 2$), $\lambda = 0,355$ мкм ($k = 3$), $\lambda = 0,532$ мкм ($k = 4$). Видно, что точность измерения отношений коэффициентов поглощения по сути определяется точностью измерения параметров лазерных импульсов. Для исследованных материалов значения β_2/β_3 и β_2/β_4 оказываются равными соответственно: $4 \cdot 10^{14}$ Вт·см⁻² и $9 \cdot 10^{26}$ Вт²·см⁻⁴ для КСІ, и $5 \cdot 10^{14}$ Вт·см⁻² и $4 \cdot 10^{26}$ Вт²·см⁻⁴ для NaCl. Для определения абсолютных значений коэффициентов β_3 и β_4 мы использовали значения β_2 полученные в ³ прямыми измерениями поглощения света. Тогда для КСІ имеем: $\beta_3 = 5 \cdot 10^{-24}$ см³·Вт⁻², $\beta_4 = 2 \cdot 10^{-36}$ см⁵·Вт⁻³, для NaCl: $\beta_3 = 7 \cdot 10^{-24}$ см³·Вт⁻², $\beta_4 = 8 \cdot 10^{-36}$ см⁵·Вт⁻³.

С другой стороны из (2) и (3) по измеренным U_{pc} , при известных β_2 , можно определить дрейфовые подвижности электронов в зоне проводимости. Анализ показывает, что для характерных значений времен $\tau_r \approx 5$ нс, наблюдавшихся в наших экспериментах, $\varphi(\tau_r/\tau_x) = \varphi(5/1,5) = 0,6$. Тогда μ определяется однозначно. Для КСІ: $\mu = 1$ см²·В⁻¹·с⁻¹, для NaCl: $\mu = 0,9$ см²·В⁻¹·с⁻¹. Заметим, что измеренные значения дрейфовых подвижностей относятся к термолизованным электронам, поскольку наблюдаемый в наших условиях сигнал ФП практически полностью формируется после окончания лазерного импульса. Имеющиеся в литературе ⁴ данные по холловской подвижности электронов в ШГК: $\mu_H = (1 \div 2) 10$ см²·В⁻¹·с⁻¹. Обращает на себя внимание существенное (на порядок) отличие этих величин от измеренных нами.

В заключение отметим, что разработанная нами методика пикосекундной лазерной ФП позволяет непосредственно регистрировать НН с высокой чувствительностью (минимально обнаружимые концентрации электронов $\sim 10^{11} \div 10^{12}$ см⁻³), изучать их кинетику с хорошим

временным разрешением (в принципе десятки пикосекунд), с высокой относительной точностью, измерять коэффициенты многофотонного поглощения в различных классах широкозонных диэлектриках, т. е. является универсальным способом исследования многофотонных процессов возбуждения НН заряда, в отличие от использованных в ¹ и ².

Литература

1. *Brost G., Braunlich P., Kelly P.* Phys. Rev., 1984, **B30**, 4675.
2. *Jones S.C., Shen X.A., Braunlich P.F., Kelly P., Epifanov A.S.* Phys. Rev., 1987, **B35**, 894.
3. *Liu P., Yen R., Smith W.L., Lotem H., Bechtel J.H., Bloembergen N., Adhav R.S.* Phys. Rev., 1978, **B17**, 4620.
4. *Ahrenkiel R.K., Brown F.C.* Phys. Rev., 1964, **A136**, 223.

Институт общей физики
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
19 марта 1987 г.