

«ВСПЫШЕЧНАЯ» КИНЕТИКА ФОТОСТИМУЛИРОВАННОГО ОПТИЧЕСКОГО ПОГЛОЩЕНИЯ В СТЕКЛООБРАЗНЫХ ПОЛУПРОВОДНИКАХ

Архипов В. И., Емельянова Е. В.

Теоретически анализируется зависимость кинетики фотостимулированного оптического поглощения в световодах из высокочистых халькогенидных стекол от длины волны зондирующего (распространяющегося в световоде) сигнала, а также от интенсивности боковой подсветки. Показано, что в случае достаточно большой длины волны зондирующего излучения и не слишком интенсивной подсветки имеет место «вспышечная» кинетика коэффициента поглощения.

Исследование фотостимулированного оптического поглощения в высокочистых халькогенидных стеклообразных полупроводниках (ХСП) в настоящее время актуально как с научной, так и с практической точек зрения. С одной стороны, изучение этого явления позволяет выявить основные механизмы оптического поглощения в высокочистых стеклах. С другой стороны, фотостимулированное поглощение, обусловленное боковой подсветкой, резко увеличивает оптические потери в планарных и волоконных световодах на основе ХСП.

При изучении фотостимулированного поглощения важнейшим оказывается вопрос о том, что является причиной уменьшения прозрачности материала — вызванное подсветкой изменение структуры (фотоструктурные превращения), рождение новых точечных дефектов или изменение зарядового состояния существующих в материале ловушечных уровней. Ответ на этот вопрос дают проведенные в последнее десятилетие эксперименты по параллельному (на одних и тех же образцах и в одних и тех же условиях) исследованию нестационарных процессов фотопроводимости и фотостимулированного оптического поглощения [1-3]. В этих экспериментах установлено, что кинетика фотостимулированного поглощения полностью соответствует временным характеристикам нестационарной фотопроводимости как при импульсном, так и при непрерывном возбуждении [2, 3]. Это обстоятельство свидетельствует в пользу электронной (а не структурной) природы фотостимулированного поглощения в аморфных и стеклообразных полупроводниках.

В настоящей работе в рамках «зарядово-ловушечной» модели анализируется зависимость кинетики фотостимулированного оптического поглощения от длины волны (частоты) зондирующего (распространяющегося в световоде) сигнала, а также от интенсивности боковой подсветки. Показано, что в случае достаточно большой длины волны зондирующего излучения и не слишком интенсивной подсветки кинетика фотостимулированного поглощения оказывается «вспышечной», т. е. при непрерывной подсветке коэффициент фотостимулированного поглощения проходит через максимум перед выходом на стационарное значение.

Рассмотрим оптическое волокно, через которое проходит свет частотой ω . Волокно подвергается воздействию боковой подсветки, генерирующей однородно по объему материала электрон-дырочные пары, причем теми генерации G постоянна начиная с момента включения облучения $t=0$.

Будем считать, что рассматриваемое волокно является достаточно чистым (т. е. очищенным от примесей) и прозрачность материала определяется оптическим поглощением, обусловленным взаимодействием световых квантов с генерированными излучением носителями, захваченными на ловушки [4]. В этих условиях коэффициент оптического поглощения γ (в децибеллах) определяется выражением

$$\gamma(t) = 4.34S \int_0^{\hbar\omega} \rho(\varepsilon, t) d\varepsilon, \quad (1)$$

где ε — энергия локализованного состояния, $\rho(\varepsilon, t) d\varepsilon$ — плотность носителей, захваченных на локализованные состояния с энергией от ε до $\varepsilon + d\varepsilon$, S — сечение взаимодействия фотона с носителем, захваченным на локализованное состояние, $\hbar\omega$ — энергия фотона, t — время.

Процессы генерации носителей заряда и изменения зарядового состояния ловушек описываются системой уравнений, включающей в себя уравнение захвата и освобождения носителей, уравнение непрерывности и уравнение сохранения полного числа носителей:

$$d\rho(\varepsilon, t)/dt = (1/\tau_0 N_t) [g(\varepsilon) - \rho(\varepsilon, t)] p_c(t) - \nu_0 \exp(-\varepsilon/kT) \rho(\varepsilon, t), \quad (2)$$

$$dp(t)/dt = G - Rp(t) p_c(t), \quad (3)$$

$$p(t) = p_c(t) + \int_0^{\infty} d\varepsilon \rho(\varepsilon, t), \quad (4)$$

где p — полная плотность носителей, p_c — плотность носителей в проводящем состоянии, $g(\varepsilon) d\varepsilon$ — плотность локализованных состояний с энергией от ε до $\varepsilon + d\varepsilon$, N_t — полная плотность локализованных состояний, ν_0 — частотный фактор термического освобождения, T — температура, k — постоянная Больцмана, τ_0 — время жизни носителей в проводящем состоянии, R — константа рекомбинации.

Для многих оптических материалов (например, α -SiO₂, халькогенидных стекол) характерен широкий энергетический спектр локализованных состояний, и в течение длительного времени после начала облучения заселенность ловушек далека от равновесной. В этом случае релаксация генерированного заряда происходит в дисперсионном режиме [5]. На длительном начальном интервале времени, когда ловушки далеки от предельного заполнения, решение уравнений (3) и (4) дает следующее соотношение между функциями $p(t)$ и $p_c(t)$ для дисперсионного режима [5]:

$$p_c(t) = (d/dt) [\tau(t) p(t)], \quad (5)$$

где переменное время жизни $\tau(t)$ делокализованных носителей до захвата на «глубокие» ловушки, лежащие ниже демаркационного энергетического уровня $\varepsilon_*(t) = kT \ln(\nu_0 t)$, определяется формулой

$$[1/\tau(t)] = (1/\tau_0) \int_{\varepsilon_*(t)}^{\infty} d\varepsilon [g(\varepsilon)/N_t]. \quad (6)$$

На «мелких» локализованных состояниях, лежащих выше демаркационного уровня энергии $\varepsilon_*(t)$, к моменту t уже устанавливается термически равновесное распределение захваченных носителей. Соответственно для мелких локализованных состояний получаем решение уравнения (2) в виде

$$\rho(\varepsilon, t) = [1/\nu_0 \tau_0] [g(\varepsilon)/N_t] p_c(t) \exp(\varepsilon/kT). \quad (7)$$

Для носителей, находящихся на глубоких ловушках, вероятность термического освобождения носителя мала по сравнению с вероятностью захвата. В этом случае для плотности локализованных носителей имеем

$$\rho(\varepsilon, t) = (1/\tau_0) [g(\varepsilon)/N_t] \int_0^t dt' p_c(t'). \quad (8)$$

Подставляя выражения (7) и (8) для плотности мелких и глубоких локализованных состояний в уравнение (1), получаем следующий вид коэффициента оптического поглощения:

$$\gamma(t) = 4.34S \left\{ (1/\nu_0\tau_0) p_c(t) \int_0^{\varepsilon_*(t)} d\varepsilon [g(\varepsilon)/N_f] \exp(\varepsilon/kT) + (1/\tau_0) \int_0^t p_c(t') dt' \times \right. \\ \left. \times \int_{\varepsilon_*(t)}^{\hbar\omega} [g(\varepsilon)/N_f] d\varepsilon \right\}, \quad t < t_w, \quad (9a)$$

$$\gamma(t) = 4.34S \left\{ (1/\nu_0\tau_0) p_c(t) \int_0^{\hbar\omega} d\varepsilon [g(\varepsilon)/N_f] \exp(\varepsilon/kT) \right\}, \quad t \geq t_w, \quad (9b)$$

где $t_w = (1/\nu_0) \exp(\hbar\omega/kT)$ — время достижения демаркационным энергетическим уровнем энергии кванта $\hbar\omega$.

Точное аналитическое решение уравнений (3)—(5), (9a) и (9b) представляет собой трудную математическую задачу. Поэтому воспользуемся приближенными решениями уравнений (3) и (5), полученными в работе [6].

В интервале малых времен плотность неравновесных носителей еще невелика и квадратичным по плотности темпом рекомбинации носителей можно пренебречь. В результате начальная асимптотика для функций $p(t)$ и $p_c(t)$ принимает вид

$$p(t) = Gt, \quad (10a)$$

$$p_c(t) = (d/dt)[Gt\tau(t)]. \quad (10b)$$

При больших временах устанавливается «квазистационарное» соотношение между темпами генерации и рекомбинации носителей, и в уравнении (3) можно пренебречь производной от полного числа носителей. В этом случае асимптотическое поведение функций $p(t)$ и $p_c(t)$ имеет вид

$$p(t) = (2G/R)^{1/2} [1/\tau(t)] \left[\int_0^t dt' \tau(t') \right]^{1/2}, \quad (11a)$$

$$p_c(t) = (G/2R)^{1/2} \tau(t) \left[\int_0^t dt' \tau(t') \right]^{-1/2}. \quad (11b)$$

Стационарный режим оптического поглощения имеет место на временах, когда происходит практически полное заполнение ловушек, лежащих ниже демаркационного уровня $\varepsilon_*(t)$, и соответственно устанавливается стационарная граница между мелкими и предельно заполненными глубокими ловушками, т. е. формируется квазиуровень Ферми ε_d , соответствующий данному темпу генерации. Время установления стационарного режима t_{st} определяется как момент, когда заселенность глубоких ловушек становится равной единице. Используя уравнение (8), для времени t_{st} запишем следующую формулу:

$$(1/\tau_0 N_f) \int_0^{t_{st}} dt' p_c(t') = 1, \quad (12)$$

энергию квазиуровня Ферми можно определить из условия

$$\varepsilon_d = \varepsilon_*(t_{st}). \quad (13)$$

Решение системы уравнений в условиях предельного заполнения глубоких ловушек имеет вид

$$P_{st} = \int_{\varepsilon_d}^{\infty} d\varepsilon g(\varepsilon), \quad (14)$$

$$p_c^{(st)} = (G/R) \left[\int_{\varepsilon_d}^{\infty} d\varepsilon g(\varepsilon) \right]^{-1}. \quad (15)$$

Полученные общие решения для иллюстрируем на примере энергетического спектра локализованных состояний $g(\varepsilon) = (N_t/\varepsilon_0) \exp(-\varepsilon/\varepsilon_0)$, (где ε_0 — характеристическая энергия), который характерен для многих неупорядоченных материалов, применяемых в интегральной и волоконной оптике. В этом случае асимптотические выражения для функций $p(t)$ и $p_c(t)$ описываются степенными функциями

$$p(t) = Gt, \quad t \leq t_m, \quad (16a)$$

$$p_c(t) = G\tau(t), \quad t \leq t_m, \quad (16b)$$

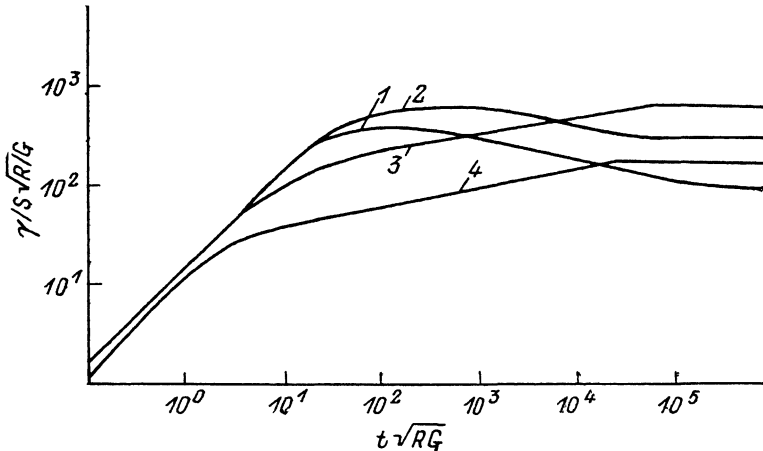
$$t_m = \tau_0 (\tau_0 \nu_0)^{-\alpha/(1+\alpha)} [RG\tau_0^2]^{-1/(1+\alpha)}, \quad \alpha = kT/\varepsilon_0, \quad (17)$$

$$p(t) = (2G/R)^{1/2} (\nu_0 \tau_0)^{-1/2} (\nu_0 t)^{(1-\alpha)/2}, \quad t_m \leq t < t_{st}, \quad (18a)$$

$$p_c(t) = (G/2R)^{1/2} (\nu_0 \tau_0)^{-1/2} (\nu_0 t)^{(\alpha-1)/2}, \quad t_m \leq t < t_{st}, \quad (18b)$$

$$t_{st} = \tau_0 (\nu_0 \tau_0)^{-\alpha/(1+\alpha)} (N_t^2 R/G)^{1/(1+\alpha)}. \quad (19)$$

Зависимости (16b) и (18b) показывают, что в момент $t=t_m$ функция $p_c(t)$ проходит через достаточно резкий максимум. Немонотонная временная зависимость



Зависимость коэффициента оптического поглощения γ от времени t .

Значения параметров: $R=10^{-6}$ см²/с, $\hbar\omega=0.6$ эВ, $\varepsilon_0=0.04$ эВ, $N_t=10^{20}$ см⁻³, G , см⁻³·с⁻¹: 1 — 10^{20} , 2 — 10^{14} , 3 — 10^{18} , 4 — 10^{24} .

плотности свободных носителей ярко проявляется во вспышечной кинетике фотостимулированного тока (см., например, [7]). При определенных условиях фотостимулированное поглощение также может проявлять вспышечную кинетику. Действительно, если частота излучения, распространяющегося в световоде, достаточно велика и поглощение связано в основном с переходами в зону проводимости носителей из глубоких ловушек, то временная зависимость коэффициента поглощения повторяет вид функции $p(t)$, которая монотонно возрастает на всем интервале времени. Однако если мы имеем дело с достаточно длинноволновым излучением и поглощение обусловлено переходами носителей, захваченных на мелкие ловушки, заселенность которых пропорциональна плотности носителей в проводящих состояниях [см. (7)], то коэффициент поглощения будет проходить через максимум перед выходом на стационарное значение, т. е. кинетика поглощения становится вспышечной.

Подставляя найденные асимптотики (16a), (16b) и (18a), (18b) в уравнения (9a), (9б), получаем следующие выражения для коэффициента оптического поглощения в различных временных интервалах:

$$\gamma(t) = 4.34SG\tau_0 \{ (\alpha/\nu_0\tau_0) [\nu_0 t - (\nu_0 t)^\alpha] + (t/\tau_0) [1 - \exp(-\hbar\omega/\varepsilon_0)(\nu_0 t)^\alpha] \}, \quad t \leq t_m, \quad t < t_w, \quad (20)$$

$$\gamma(t) = 4.34S (G/2R)^{1/2} (\nu_0 \tau_0)^{-1/2} \{ \alpha (\nu_0 t)^{(\alpha-1)/2} [(\nu_0 t)^{1-\alpha} - 1] + 2 [(\nu_0 t)^{(1-\alpha)/2} - \exp(-\hbar\omega/\varepsilon_0)(\nu_0 t)^{(1+\alpha)/2}] \}, \quad t_m \leq t < t_w, \quad (21)$$

$$\gamma(t) = 4.34\alpha S (G/2R)^{1/2} (\nu_0 \tau_0)^{-1/2} (\nu_0 t)^{(\alpha-1)/2} (\exp[(\hbar\omega/kT)(1-\alpha)] - 1), \quad t_m, \quad t_w \leq t < t_{st}, \quad (22)$$

$$\gamma(t) = 4.34\alpha SN_i (G/RN_i^2 \nu_0 \tau_0)^{1/(1+\alpha)} (\exp[(\hbar\omega/kT)(1-\alpha)] - 1), \quad t_m, t_w \leq t_{st} \leq t, \quad (23)$$

$$\gamma(t) = 4.34 \sqrt{2} SN_i \{ (G/RN_i^2 \nu_0 \tau_0)^{2/(1+\alpha)} - (\alpha/2) (G/RN_i^2 \nu_0 \tau_0)^{1/(1+\alpha)} - \exp(-\hbar\omega/\varepsilon_0) \}, \quad t_{st} \leq t < t_w. \quad (24)$$

В работе получено также численное решение задачи о кинетике фотостимулированного поглощения. Результаты расчетов показаны на рисунке кривыми $\gamma(t)$, построенными для различных значений темпа генерации, т. е. для различных интенсивностей боковой подсветки G . Заметим, что вспышечная кинетика поглощения наблюдается при достаточно малых значениях G , когда декаркационная энергия $\varepsilon_*(t)$ пересекает «уровень энергии кванта» прежде чем устанавливается режим предельного заполнения глубоких ловушек (именно в этом случае поглощение обусловлено переходами носителей с мелких ловушек). Из этого условия нетрудно получить следующее условие для темпа генерации пар, при котором наблюдается вспышечная кинетика оптического поглощения:

$$G < (\nu_0 \tau_0) RN_i^2 \exp(-\hbar\omega/\varepsilon_0) \exp(-\hbar\omega/kT). \quad (25)$$

Следует заметить, что предельный темп генерации определяется не только энергией светового кванта, но и температурой световода.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Аморфные полупроводники. Сб. обзоров / Под ред. М. Бродски. М., 1982. 413 с.
- [2] Физика гидрогенизированного аморфного кремния. Сб. обзоров, В. II / Под ред. Дж. Джоунопулоса, Дж. Люковский. М., 1987. 448 с.
- [3] Orenstein J., Kastner M. A., Vaninov V. // Phil. Mag. B. 1982. V. B46. N 1. P. 23—62.
- [4] Архипов В. И., Емельянова Е. В. // Высококачественные вещества. 1989. Т. 3. В. 6. С. 198—201.
- [5] Архипов В. И., Руденко А. И., Андриеш А. М. и др. Нестационарные инжекционные токи в неупорядоченных твердых телах. Кишинев, 1983. 175 с.
- [6] Архипов В. И., Руденко А. И. // ФТП. 1982. Т. 16. В. 11. С. 2068—2070.
- [7] Архипов В. И., Емельянова Е. В., Перова И. А., Руденко А. И. // ЖФХ. 1989. Т. 63. В. 6. С. 1547—1551.

Московский инженерно-физический институт

Получена 4.04.1991
Принята к печати 19.06.1991