

05;06;07;12

## Нелинейное взаимодействие бегущих решеток объемного заряда и фотопроводимости в кристалле $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$

© М.А. Брюшинин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
194021 Санкт-Петербург, Россия  
e-mail: mb@mail.ioffe.ru

(Поступило в Редакцию 29 января 2004 г.)

Экспериментально исследуется эффект нелинейного взаимодействия бегущих решеток объемного заряда и фотопроводимости. Для наблюдения этого эффекта кристалл с приложенным постоянным электрическим полем освещается колеблющейся интерференционной картиной с пространственной частотой  $K$  и частотой колебаний  $\omega$ . К образцу прикладывается также переменное электрическое поле с частотой  $\Omega$ . При определенном выборе частот  $\omega$  и  $\Omega$  в кристалле происходит совместное возбуждение и взаимодействие двух собственных типов колебаний: решетки объемного заряда, бегущей со скоростью  $|\omega - \Omega|/K$ , и решетки фотопроводимости, бегущей со скоростью  $-\omega/K$ . Исследования эффекта проведены с помощью метода нестационарной фотоэдс в фоторефрактивном кристалле  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ .

### Введение

Динамика фотоэлектрических процессов определяет принципы действия и технические характеристики большинства оптоэлектронных приборов: фоторезисторов, фотодиодов, адаптивных интерферометрических датчиков, устройств распознавания изображений и голографической памяти на основе фоторефрактивных материалов. В связи с этим изучение релаксационных процессов в полупроводниках остается одной из важнейших задач физики твердого тела.

Эволюция фотоиндуцированных зарядов в полупроводниках включает два основных этапа: формирование распределения фотопроводимости и образование объемного заряда [1,2]. Если кристалл помещен во внешнее электрическое поле, релаксация распределений фотопроводимости и объемного заряда может принять осциллирующий характер. Существование в полупроводнике двух собственных типов колебаний (бегущих решеток проводимости и „волн пространственной перезарядки ловушек“) было предсказано в работе [3]. Экспериментально осцилляции оптически индуцированного объемного заряда были впервые обнаружены в фоторефрактивных кристаллах  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  в виде „бегущих“ голограмм [4,5]. Позже в этих же кристаллах с помощью так называемого „time-of-flight“ метода были изучены бегущие решетки фотопроводимости [6]. К настоящему времени исследование волн пространственного заряда и фотопроводимости осуществлено с помощью ряда родственных методик [7–13]. Среди этих методик особое место занимает метод нестационарной фотоэдс [14,15].

Нестационарная фотоэдс, или в другой терминологии нестационарный голографический фототок, проявляется в виде знакопеременного тока в полупроводнике, освещаемом колеблющейся интерференционной картиной. Появление фототока обусловлено периодическими смещениями распределений фотопроводимости и элек-

трического поля относительно друг друга. Именно такой механизм возбуждения сигнала позволяет использовать данную методику для исследования как фотопроводимости, так и объемного заряда. Так, амплитудно-частотная характеристика сигнала, возникающего в кристаллах с приложенным электрическим полем, имеет два резонансных максимума, один из которых связан с возбуждением волн пространственного заряда, а другой — с возбуждением бегущих решеток фотопроводимости [15].

Несмотря на большое количество публикаций по данной тематике, до сих пор остался назатронутым вопрос о том, возможно ли одновременное возбуждение указанных собственных типов колебаний и их взаимодействие. В существующих методиках, включая метод нестационарной фотоэдс, интерференционная картина с конкретной пространственной частотой  $K$  и частотой колебаний  $\omega$  возбуждает либо волну пространственного заряда, либо бегущую решетку проводимости. Это связано с тем, что частота собственных колебаний решетки объемного заряда в высокоомных кристаллах (таких, как  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ) составляет  $\omega_{sc}/2\pi = 10\text{--}100\text{ Hz}$ , тогда как частота колебаний решетки фотопроводимости с тем же пространственным периодом достигает  $\omega_{pc}/2\pi = 0.01\text{--}1\text{ MHz}$ . Ситуация отчасти напоминает рассеяние света на акустических волнах, где взаимодействуют частицы с сопоставимым импульсом (волновым вектором) и сильно различающейся энергией (частотой). Для того чтобы осуществить одновременное возбуждение и эффективное взаимодействие решетки объемного заряда ( $\omega_{sc}, K$ ), бегущей в направлении постоянного электрического поля со скоростью  $\omega_{sc}/K$ , с решеткой электронной проводимости ( $\omega_{pc}, -K$ ), бегущей в противоположном направлении со скоростью  $-\omega_{pc}/K$ , в кристалле должно присутствовать третье колебание ( $\Omega, \omega$ ), обеспечивающее выполнение условий аналогичных законам сохранения энергии и импульса  $\omega_{sc} + \omega_{pc} = \Omega$ ,  $K - K = 0$ . В качестве такого колебания в данной работе

используется внешнее электрическое поле с частотой  $\Omega$ . Суть эксперимента, рассматриваемого в данной статье, состоит в возбуждении волны пространственного заряда за счет нелинейного взаимодействия бегущей решетки фотопроводимости с переменным электрическим полем. Для обнаружения эффекта используется модифицированный метод нестационарной фотоэдс.

### Экспериментальная установка

Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. В качестве источника когерентного света использовался гелий-кадмиевый лазер ( $\lambda = 442 \text{ nm}$ ,  $P_{out} \simeq 3 \text{ mW}$ ). Свет от лазера разделялся на два луча, один из которых модулировался по фазе с помощью электрооптического модулятора МЛ-102А. На модулятор подавалось синусоидальное напряжение с частотой  $\omega$ . Амплитуда фазовой модуляции составляла  $\Delta = 0.8$ . Далее световые пучки расширялись и направлялись на поверхность кристалла, где формировалась колеблющаяся интерференционная картина со средней интенсивностью  $I_0 = 84 \text{ W/m}^2$ , контрастом  $m = 0.92$  и пространственной частотой  $K = 25 \text{ mm}^{-1}$ . К кристаллу прикладывалась комбинация постоянного и переменного напряжений  $U_{ext} = U_0 + U_A \cos \Omega t$ . Присутствие постоянного напряжения  $U_0$  является необходимым условием для возбуждения бегущих решеток. Переменное напряжение с амплитудой  $U_A$  и частотой  $\Omega$  необходимо для возникновения связи между бегущими решетками заряда и проводимости. Нестационарный голографический фототок, возникающий в образце, вызывал соответствующее падение напряжения на нагрузочном сопротивлении  $R_L = 18 \text{ k}\Omega$ . Затем этот сигнал усиливался, фильтровался и измерялся с помощью селективного нановольтметра Unipan-232В. Для измерения гармоники нестационарного фототока на разностной частоте  $|\omega - \Omega|$  было сформировано опорное напряжение с этой же частотой. Это достигалось путем перемножения напряжений, подаваемых на электрооптический модулятор и кристалл, в балансном смесителе, собранном на микросхеме К174ПС1. Гармоники опорного напряжения с частотами  $\omega$ ,  $\Omega$ ,  $\omega + \Omega$  подавлялись с помощью фильтра низких частот.

При использовании стандартной методики возбуждения сигнала нестационарной фотоэдс к кристаллу прикладывалось только постоянное напряжение  $U_0$ , а детектирование сигнала производилось на частоте фазовой модуляции света  $\omega$  [15]. Для измерения сигнала использовались спектр-анализатор СК4-56 и селективный нановольтметр Unipan-232В.

Исследования проводились в фоторефрактивном кристалле  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ . Образец представлял собой монокристалл размером  $10 \times 3 \times 1 \text{ mm}$ . Передняя и задняя поверхности ( $10 \times 1 \text{ mm}$ ) были отполированы до оптического качества. С помощью серебряной пасты на боковые поверхности были нанесены электроды  $3 \times 3 \text{ mm}$ .

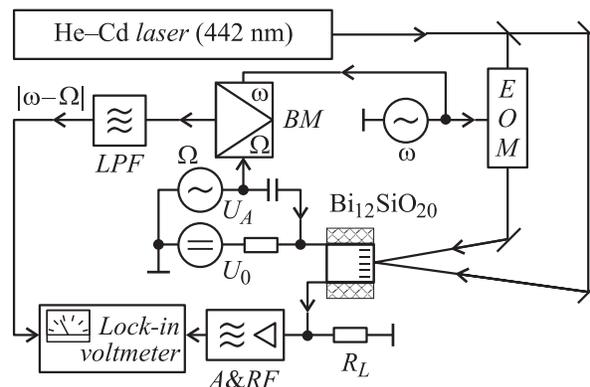


Рис. 1. Экспериментальная установка для исследования нестационарного голографического фототока, возбуждаемого на разностной комбинационной частоте (EOM — электрооптический модулятор, BM — балансный смеситель, LPF — фильтр низких частот, A&RF — предусилитель с режекторным фильтром).

Межэлектродное расстояние составляло  $L = 1 \text{ mm}$ . Кристалл был закреплен между двумя слоями пенопласта, выполняющих роль демпфера механических колебаний, возникающих вследствие пьезоэлектрического эффекта.

### Экспериментальные результаты

Прежде чем перейти к исследованию нелинейного взаимодействия решеток объемного заряда и фотопроводимости, следует кратко рассмотреть результаты измерений нестационарного голографического фототока при стандартном методе возбуждения сигнала. На рис. 2 представлены амплитудно-частотные характеристики сигнала нестационарной фотоэдс, снятые в кристалле  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  при трех значениях приложенного

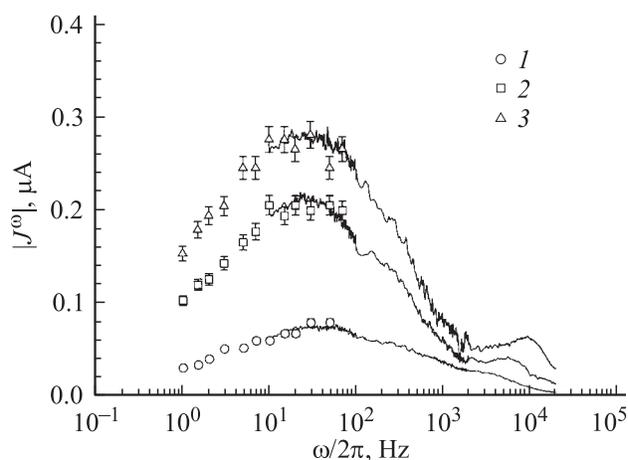


Рис. 2. Амплитудно-частотные характеристики нестационарного голографического фототока, возбуждаемого в  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  стандартным способом. Зависимости измерены при трех значениях постоянного электрического поля, приложенного к образцу:  $E_0 = 6$  (1),  $10$  (2),  $14 \text{ kV/cm}$  (3).  $E_A = 0$ .

постоянного поля  $E_0 = U_0/L$ . При увеличении поля наблюдается рост амплитуды сигнала, причем сначала на частотной характеристике появляется один максимум в области низких частот ( $\omega/2\pi \sim 100$  Hz), затем при увеличении поля до  $E_0 \simeq 6$  kV/cm появляется плечо в области частот  $\omega/2\pi \sim 3$  kHz, которое при дальнейшем увеличении внешнего поля превращается во второй максимум. Из частотных зависимостей также следует, что увеличение внешнего поля приводит к сдвигу первого максимума в область низких частот, а второго — в область высоких частот. Так, при величине постоянного поля  $E_0 = 10$  kV/cm соответствующие резонансные частоты равны  $\omega_{sc}/2\pi \simeq 25$  Hz и  $\omega_{pc}/2\pi \simeq 5.6$  kHz, а в поле  $E_0 = 14$  kV/cm они составляют  $\omega_{sc}/2\pi \simeq 20$  Hz и  $\omega_{pc}/2\pi \simeq 9.1$  kHz. Как показано в работе [15], такое поведение сигнала связано с резонансным возбуждением бегущих решеток объемного заряда и электронной фотопроводимости, для которых справедливы следующие дисперсионные соотношения

$$\omega_{sc} = (\tau_M K L_0)^{-1}, \quad (1)$$

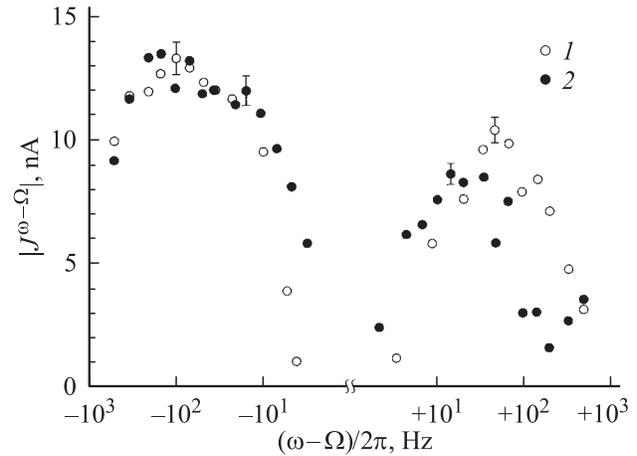
$$\omega_{pc} = K \mu E_0, \quad (2)$$

где  $\tau_M$  — время максвелловской релаксации,  $L_0 = \mu \tau E_0$  — дрейфовая длина,  $\mu$  — подвижность,  $\tau$  — время жизни электронов.

Первый резонансный максимум заметно уширен, что, вероятно, связано с нелинейностью голографической записи, проявляющейся при больших значениях контраста интерференционной картины [16]. Уширение резонансного максимума также может быть связано с неравномерностью засветки кристалла: при больших значениях коэффициента поглощения света ( $\alpha \sim 30$  см<sup>-1</sup> [2]) время релаксации решетке объемного заряда в приповерхностном слое заметно меньше времени релаксации в более глубоких слоях.

Известно, что метод нестационарной фотоэдс представляет уникальную возможность для прямых измерений дрейфовой подвижности носителей заряда. Действительно, измерив частоту второго резонансного максимума при выбранных  $K$  и  $E_0$ , можно легко оценить подвижность носителей:  $\mu \simeq 0.015$  см<sup>2</sup>/Vs. Это значение неплохо соотносится с величиной подвижности  $\mu = 0.016$  см<sup>2</sup>/Vs, измеренной ранее для длины волны света  $\lambda = 458$  nm [15].

Рассмотрим теперь результаты исследования нелинейного взаимодействия бегущих решеток объемного заряда и фотопроводимости с использованием модифицированного метода нестационарной фотоэдс. Для реализации этого метода частота внешнего переменного поля устанавливалась примерно равной частоте второго резонансного максимума:  $\Omega/2\pi = 5.9$  kHz для  $E_0 = 10$  kV/cm и  $\Omega/2\pi = 8.8$  kHz для  $E_0 = 14$  kV/cm. Небольшие отклонения ( $\sim 300$  Hz) частоты внешнего поля  $\Omega$  от резонансной частоты  $\omega_{pc}$  допустимы, так как ширина второго резонансного максимума составляет 5–10 kHz (рис. 2). Амплитуда внешнего переменного



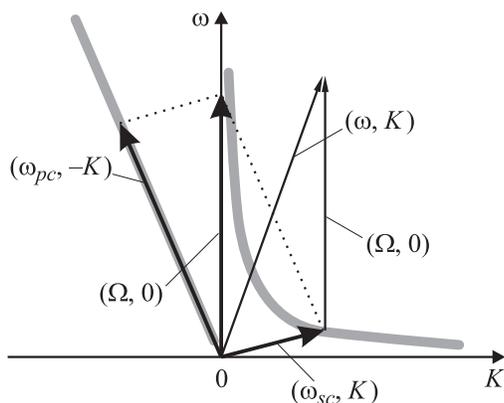
**Рис. 3.** Амплитудно-частотная характеристика нестационарного голографического фототока, возбуждаемого в  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  на разностной комбинационной частоте. Зависимости получены при двух значениях постоянного поля и при двух соответствующих частотах переменного поля:  $E_0 = 10$  kV/cm,  $\Omega/2\pi = 5.9$  kHz (1) и  $E_0 = 14$  kV/cm,  $\Omega/2\pi = 8.8$  kHz (2).  $E_A = 3.5$  kV/cm.

поля ( $E_A = U_A/L = 3.5$  kV/cm) была заметно меньше величины постоянного поля, так что возможные смещения резонансных частот должны быть незначительными.

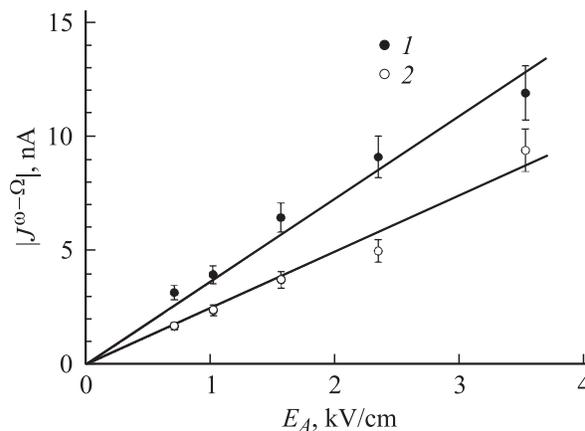
Итак, амплитудно-частотная характеристика нестационарного голографического фототока, возбуждаемого на разностной комбинационной частоте  $\omega - \Omega$ , представлена на рис. 3. На частотной зависимости присутствуют два максимума: один наблюдается при отрицательной разности частот  $(\omega - \Omega)/2\pi \simeq -100$  Hz ( $E_0 = 10$  kV/cm) и  $(\omega - \Omega)/2\pi \simeq -80$  Hz ( $E_0 = 14$  kV/cm), а второй — при положительной разности частот  $(\omega - \Omega)/2\pi = 50$  Hz ( $E_0 = 10$  kV/cm) и  $(\omega - \Omega)/2\pi = 30$  Hz ( $E_0 = 14$  kV/cm). При увеличении внешнего постоянного поля происходит увеличение амплитуды сигнала и сдвиг максимумов в область низких частот. Именно такое поведение характерно для волн пространственного заряда [2]. Резонансные максимумы оказались довольно широкими. В большей степени это относится к максимуму в области  $\omega - \Omega < 0$ , который не только сильно уширен и искажен, но и характеризуется более высокой резонансной частотой. Как и в стандартной методике, вероятно, это связано с нелинейными ограничениями амплитуды решетки поля пространственного заряда, возникающими при больших значениях контраста интерференционной картины, и с неравномерностью засветки по толщине кристалла.

Другой особенностью частотных зависимостей является то, что максимум в области  $\omega - \Omega < 0$  имеет большую амплитуду, чем максимум в области  $\omega - \Omega > 0$ . Это объясняется принципиальным различием в механизме возбуждения фототока для указанных частот. При отрицательной разности частот ( $\omega - \Omega < 0$ ) волна пространственного заряда возникает за счет взаи-

модействия внешнего поля с решеткой фотопроводимости, бегущей навстречу приложенному электрическому полю. При синхронизации движений интерференционной картины с движением электронов в зоне проводимости происходит резонансное увеличение волны фотопроводимости. Таким образом, в этой области частот должно наблюдаться совместное возбуждение и взаимодействие двух собственных типов колебаний: бегущих решеток объемного заряда и фотопроводимости. При положительной разности частот ( $\omega - \Omega > 0$ ) волна пространственного заряда возникает за счет взаимодействия внешнего поля с решеткой проводимости, движущейся в направлении приложенного поля. В этом случае решетка фотопроводимости не является собственным типом колебаний в полупроводнике — она лишь нерезонансным образом повторяет движение колеблющейся интерференционной картины в направлении внешнего поля. Для наглядности можно обратиться к диаграмме взаимодействия волн пространственного заряда, фотопроводимости и внешнего поля (рис. 4). Из диаграммы видно, что в первом случае переменное электрическое поле связывает два собственных типа колебаний в полупроводнике, удовлетворяя соотношениям  $\omega_{sc} + \omega_{pc} = \Omega$ ,  $K - K = 0$ , а во втором случае происходит возбуждение только одного собственного типа колебаний — волны пространственного заряда. Очевидно, что выполнение условий резонансного возбуждения как для решетки объемного заряда, так и для решетки фотопроводимости позволяет получить большую амплитуду сигнала. По всей видимости, разница в амплитуде резонансных максимумов должна определяться фактором  $KL_0$ , характеризующим



**Рис. 4.** Диаграмма взаимодействия бегущих решеток объемного заряда, электронной фотопроводимости и внешнего переменного электрического поля. Стрелками условно показаны решетка объемного заряда  $(\omega_{sc}, K)$ , бегущая со скоростью  $\omega_{sc}/K$  в направлении постоянного электрического поля, решетка фотопроводимости  $(\omega_{pc}, -K)$ , бегущая навстречу постоянному полю со скоростью  $-\omega_{pc}/K$ , решетка фотопроводимости  $(\omega, K)$ , движущаяся со скоростью  $\omega/K$  в направлении постоянного поля, и переменное электрическое поле  $(\Omega, 0)$  с частотой  $\Omega$ . Полутоновые линии — дисперсионные зависимости волн пространственного заряда  $\omega_{sc}(K)$  и фотопроводимости  $\omega_{pc}(-K)$ .



**Рис. 5.** Зависимость амплитуды нестационарного голографического фототока  $|J^{\omega-\Omega}|$  от амплитуды приложенного переменного поля. Измерения проведены для двух резонансных частот:  $(\omega - \Omega)/2\pi = -20$  Hz (1),  $(\omega - \Omega)/2\pi = +20$  Hz (2).  $E_0 = 14$  kV/cm,  $\Omega/2\pi = 8.8$  kHz.

добротность колебаний объемного заряда и проводимости. В данном эксперименте эта разница оказалась небольшой из-за уже упоминавшихся возможных нелинейных ограничений решетки поля пространственного заряда, проявляющихся при больших значениях контраста интерференционной картины.

На рис. 5 представлены зависимости амплитуды резонансных максимумов от амплитуды внешнего переменного электрического поля. В исследованном диапазоне амплитуд внешнего поля эти зависимости можно считать линейными. Ограничение амплитуды сигнала можно ожидать при таких величинах переменного поля  $E_A$ , когда  $KL_A \sim 1$  (здесь  $L_A = \mu\tau E_A$  — дрейфовая длина электронов). Для  $\mu\tau \sim 10^{-10}$  м<sup>2</sup>/В [17] и  $K = 25$  мм<sup>-1</sup> это ограничение должно начинать проявляться при  $E_A \sim 4$  кВ/см.

### Заключение

В работе впервые проведены исследования совместного возбуждения и взаимодействия двух собственных типов колебаний в полупроводнике: бегущих решеток объемного заряда и фотопроводимости. Новая методика возбуждения нестационарной фотоэдс на разностной комбинационной частоте позволила обнаружить волну пространственного заряда, возникающую за счет нелинейного взаимодействия бегущей решетки фотопроводимости с переменным электрическим полем. Особенностью данной методики является то, что пространственно-временные характеристики возникающей волны пространственного заряда отличаются от пространственно-временных характеристик внешних воздействий на кристалл, т.е. освещения и электрического поля. В этом смысле эффект напоминает другое интересное явление, наблюдаемое в фоторефрактивных

кристаллах, а именно возникновение пространственных субгармоник поля пространственного заряда [10,11].

Нелинейное взаимодействие бегущих решеток объемного заряда и фотопроводимости, а также основанный на этом эффекте модифицированный метод нестационарной фотоэдс могут найти применение для исследования быстропротекающих процессов в высокоомных полупроводниках. Примером задачи, в которой необходимо детектирование высокочастотных сигналов, является измерение истинной дрейфовой подвижности носителей в широкозонных полупроводниках со сложной структурой примесных уровней. Для кристалла  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  резонансная частота решетки фотопроводимости, из которой оценивается истинная подвижность электронов, может достигать 100 МГц [18], электрическое согласование высокоомного кристалла с входными цепями измерительных приборов на таких частотах крайне затруднено. Так как величина нестационарного голографического фототока, возникающего на разностной частоте  $\omega - \Omega$ , зависит от амплитуды бегущей решетки фотопроводимости, возбуждаемой на высокой частоте  $\omega$ , можно предположить, что амплитудно-частотная характеристика сигнала  $J^{\omega-\Omega}(\omega)$  в модифицированной методике будет аналогична частотной зависимости  $J^{\omega}(\omega)$  в стандартной методике, а следовательно, позволит определить те же параметры материала. В рассмотренном методе преобразование высокочастотного сигнала в низкочастотный происходит не в измерительном приборе, а в самом исследуемом кристалле.

Нелинейное взаимодействие бегущих решеток объемного заряда и фотопроводимости, безусловно, не ограничивается результатами, полученными в данной работе. Необходимы подробный теоретический анализ эффекта, дальнейшие экспериментальные исследования с использованием родственных методик, а также изучение возможностей практического применения рассмотренного эффекта.

Работа поддержана грантом Президента Российской Федерации (грант МК-2744.2003.02).

## Список литературы

- [1] Рывкин С.М. Фотоэлектрические явления в полупроводниках. М.: Физматгиз, 1963. 496 с.
- [2] Петров М.П., Степанов С.И., Хоменко А.В. Фоторефрактивные кристаллы в когерентной оптике. СПб.: Наука, 1992. 320 с.
- [3] Казаринов Р.Ф., Сурис Р.А., Фукс Б.И. // ФТП. 1973. Т. 7. Вып. 1. С. 149–158.
- [4] Huignard J.P., Marrakchi A. // Opt. Commun. 1981. Vol. 38. N 4. P. 249–254.
- [5] Степанов С.И., Куликов В.В., Петров М.П. // Письма в ЖТФ. 1982. Т. 8. Вып. 9. С. 527–531.
- [6] Partanen J.P., Jonathan J.M.C., Hellwarth R.W. // Appl. Phys. Lett. 1990. Vol. 57. N 23. P. 2404–2406.
- [7] Hamel de Montchenault G., Loiseaux B., Huignard J.P. // Electron. Lett. 1986. Vol. 22. N 19. P. 1030–1032.
- [8] Heaton J.M., Solymar L. // IEEE J. Quantum Electron. 1988. Vol. 24. N 3. P. 558–567.
- [9] Petrov M.P., Petrov V.M., Bryksin V.V. et al. // J. Opt. Soc. Am. B. 1998. Vol. 15. N 7. P. 1880–1888.
- [10] Mallick S., Imbert B., Ducollet H. et al. // J. Appl. Phys. 1988. Vol. 63. N 12. P. 5660–5663.
- [11] Pedersen H.C., Johansen P.M. // Opt. Lett. 1995. Vol. 20. N 7. P. 689–691.
- [12] Petrov M.P., Bryksin V.V., Vogt H. et al. // Phys. Rev. B. 2002. Vol. 66. N 8. P. 085107.
- [13] Haken U., Hundhausen M., Ley L. // Phys. Rev. B. 1995. Vol. 51. N 16. P. 10 579–10 590.
- [14] Степанов С.И., Трофимов Г.С. // ФТТ. 1986. Т. 28. Вып. 9. С. 2785–2789.
- [15] Sokolov I.A., Stepanov S.I. // J. Opt. Soc. Am. B. 1993. Vol. 10. N 8. P. 1483–1488.
- [16] Mansurova S., Stepanov S., Korneev N. et al. // Opt. Commun. 1998. Vol. 152. N 3. P. 207–214.
- [17] Bryushinin M., Kulikov V., Sokolov I. // Phys. Rev. B. 2002. Vol. 65. N 24. P. 245204.
- [18] Bryushinin M.A., Sokolov I.A. // Phys. Rev. B. 2001. Vol. 63. N 15. P. 153203.