

КИНЕТИКА ОБРАЗОВАНИЯ F -ЦЕНТРОВ ПРИ СТУПЕНЧАТОЙ ФОТОИОНИЗАЦИИ ИОНОВ Tl^+ В KBr ПИКОСЕКУНДНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ

В.В.Бочкарев, В.П.Данилов, Т.М.Мурина, А.М.Прохоров

Установлено, что время образования F -центров при ступенчатой фотоионизации примесных ионов Tl^+ в KBr составляет 30 ± 10 пс. Полученный результат свидетельствует о том, что при рекомбинации электрона с Tl^{2+} -центром в щелочно-галогидных кристаллах могут происходить процессы, аналогичные образованию $F-H$ -пар в беспримесных кристаллах.

Образование F -центров в щелочно-галогидных кристаллах (ЩГК) при воздействии на них ультракороткими лазерными импульсами исследовалось в ¹⁻⁴. Во всех указанных работах использовались беспримесные кристаллы, возбуждаемые двухфотонно либо в области переходов зона-зона, либо в экситонной полосе поглощения. Образование $F-H$ -пар авторы связывают с захватом зонного электрона V_k -центром и распадом автолокализованного экситона на структурные дефекты. Время образования $F-H$ -пар составляет от одного до нескольких десятков пикосекунд в зависимости от типа кристалла и условий возбуждения. Известно, что ступенчатая фотоионизация примесных ртутеподобных ионов (In^+ , Tl^+ и др.) в ЩГК также приводит к образованию F -центров ⁵, однако имеющихся данных недостаточно для объяснения природы их появления. Целью настоящей работы является исследование кинетики образования F -центров при ступенчатой фотоионизации примесного центра в ЩГК в пикосекундном временном масштабе.

В качестве объекта исследований был выбран кристалл KBr с примесью ионов Tl^+ . Нами использовался метод импульсной абсорбционной спектроскопии с оптической задержкой зондирующего импульса относительно возбуждающего ⁶. Импульс 4-ой гармоники $Nd : YAG$ -лазера с пассивной синхронизацией мод (0,2-0,3 мДж) фокусировался с небольшой расходимостью в пятно диаметром 3 мм на поверхность кристалла, переводя часть примесных центров в нижнее возбужденное состояние. Импульс 3-ей гармоники (2-3 мДж), используемый для фотоионизации ионов Tl^+ из возбужденного состояния, направлялся на кристалл через 300 пс после импульса 4-ой гармоники, перекрывая при этом площадь возбуждаемого объема. Источником зондирующего света служило излучение 2-ой гармоники параметрического генератора на кристалле $LiNbO_3$ с температурной перестройкой. Длительность пробного импульса измерялась корреляционными методами и составила 10-12 пс. Зондирующий импульс фокусировался в пятно диаметром 0,5 мм на поверхность кристалла и пропускался через область максимального окрашивания образца. Интенсивность импульсов 4-ой и 3-ей гармоник выбиралась такой, чтобы излучение ни одной из них в отдельности не приводило к окрашиванию кристалла и к заметным ($\Delta D > 10^{-2}$) изменениям оптической плотности в полосе поглощения F -центров в KBr . Поскольку нас интересовало изменение оптической плотности, обусловленное только действием 3-ей гармоники на предварительно возбужденный 4-ой гармоникой образец, оптическая схема эксперимента и программа обработки результатов на ЭВМ были разработаны таким образом, чтобы вычестить изменение оптической плотности при воздействии на кристалл 4-ой гармоники. Физически это значит, что в эксперименте измерялось изменение оптической плотности, обусловленное фотоионизацией ионов Tl^+ из нижнего возбужденного состояния под действием импульса 3-ей гармоники и последующими процессами релаксации носителей с образованием структурных дефектов. Все эксперименты проводились при комнатной температуре.

На первом этапе эксперимента длина волны зондирующего излучения была фиксирована и составляла $\lambda = 476$ нм. По нашим оценкам, такая длина волны соответствует поглощению

из релаксированного возбужденного состояния в зону проводимости. На рис. 1 приведена кривая просветления ($\Delta D < 0$) в зависимости от задержки импульса зондирования относительно импульса 3-ей гармоники. Просветление в данном случае связано с уходом электронов в зону проводимости из возбужденного состояния примесного центра под действием 3-ей гармоники. Кинетика, приведенная на рис. 1, определяется мгновенным откликом среды и характеризует собой временное разрешение установки.

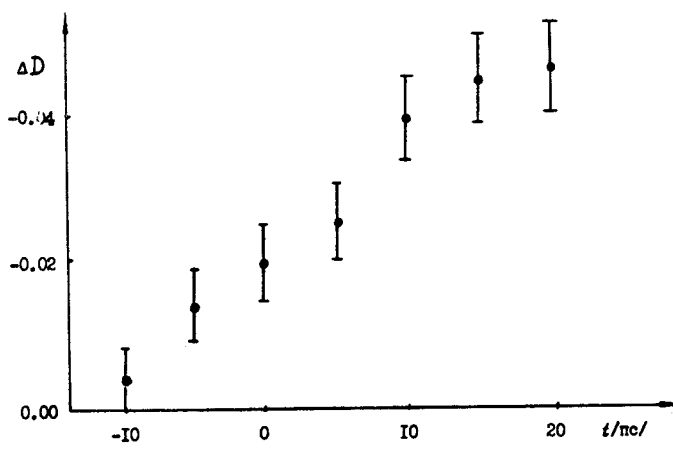


Рис. 1. Кинетика просветления поглощения из возбужденного состояния ионов Ti^+

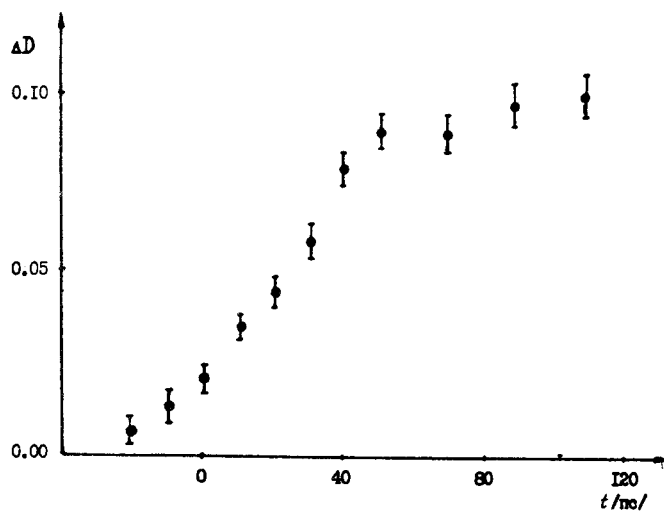


Рис. 2. Кинетика нарастания поглощения в F-полосе

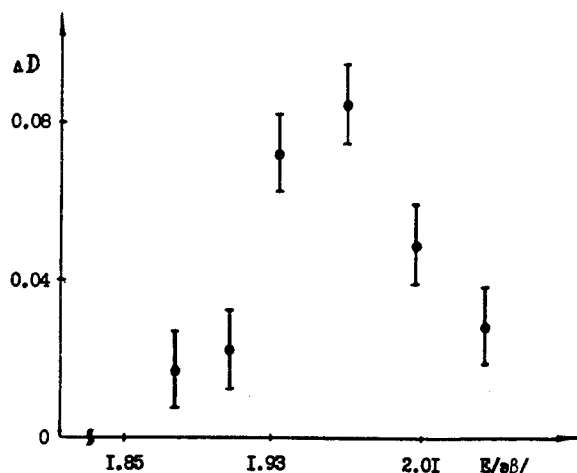


Рис. 3. Спектр поглощения образовавшихся центров окраски

На втором этапе длина волны зондирования была близка к максимуму поглощения F -центров в KVr ($\lambda = 620$ нм). Полученная кривая нарастания поглощения приведена на рис. 2. Легко заметить, что кинетика изменения оптической плотности здесь медленнее, чем в предыдущем случае мгновенного отклика среды. Численный расчет, сделанный в предположении, что отклик среды экспоненциальный и форма возбуждающего и зондирующего импульса гауссова, показывает, что время образования центров окраски составляет $\tau = 30 \pm 10$ пс.

Спектр поглощения образовавшихся центров окраски представлен на рис. 3. Измерения проведены при фиксированной задержке $\Delta t = 100$ пс зондирующего импульса относительно импульса 3-ей гармоники. Полученная спектральная зависимость удовлетворительно совпадает с известным спектром поглощения F -центров в KVr .

Таким образом, нами показано, что ступенчатая фотоионизация Tl^+ -центров в KVr приводит к образованию F -центров за время $\tau = 30 \pm 10$ пс, т.е. за время, характерное для образования F - H -пар в чистых ШГК при рекомбинации электрона с V_k -центром. Имеющихся данных недостаточно для точной идентификации типа образующихся F -центров, в частности, неизвестно, содержит ли F -центр ион Tl^+ в своем ближайшем окружении. Важно, на наш взгляд, обратить внимание на следующее обстоятельство. Поскольку при фотоионизации иона Tl^+ дырка локализована на активаторе, вероятнее всего образование F -центров (или $F_A(Tl)$ -центров) является следствием рекомбинации электрона с Tl^{2+} -центром. Полученные в настоящей работе результаты подтверждают таким образом высказанное нами ранее предположение о том, что при рекомбинации электрона с дыркой, локализованной на примесном центре в ШГК могут происходить процессы, аналогичные образованию F - H -пар в чистых кристаллах ⁷.

Авторы благодарны П.Г.Баранову и Л.Е.Нагли за обсуждение результатов и М.В.Аносову за помощь в составлении программы.

Литература

1. Bradford J.N. et al. Phys. Rev. Lett., 1975, 35, 300.
2. Suzuki Y., Hirai M. J. Phys. Soc. Jap., 1977, 43, 1679.
3. D'heretoghe J., Jacobs G. Phys. Stat. Sol. (b), 1979, 95, 291.
4. Hirai M. et al. J. Phys. Soc. Jap., 1987, 56, 2948.
5. Данилов В.П. Сб.: Лазерные методы исследований дефектов в полупроводниках и диэлектриках. М.: Наука, 1986, с. 66.
6. Данилюс Р. и др. Параметрическая генерация света и пикосекундная спектроскопия. Вильнюс: Мокслас, 1983, с. 182.
7. Баранов П.Г. и др. ФТТ, 1981, 23, 1829.

Институт общей физики
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
5 марта 1990 г.