

Влияние постоянного внешнего поля на динамику фоторефрактивного отклика в кристаллах с двукратно ионизируемыми донорными центрами и мелкими ловушками

© А.М. Плесовских, С.М. Шандаров

Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники,
634050 Томск, Россия

E-mail: shand@stack.ru

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 18 мая 2001 г.)

Проведен теоретический анализ динамики формирования поля пространственного заряда в фоторефрактивном кристалле с двукратно ионизируемыми донорными центрами и мелкими ловушками. Рассмотрены временные зависимости процессов записи фоторефрактивной решетки в отсутствие внешнего электрического поля, ее релаксации при наличии опорного пучка и последующего проявления при приложении внешнего поля.

Фоторефрактивные кристаллы являются перспективными материалами для оптической обработки информации и хранения голографического изображения [1]. Для описания процессов, проходящих в кристаллах под действием светового излучения, используются различные модели зонного переноса. Традиционно процесс образования пространственного заряда рассматривается на основе модели, включающей фотоактивные донорные центры одного типа и нефотоактивные компенсирующие акцепторы [2]. Для объяснения экспериментально наблюдаемого в кристаллах силленитов и BaTiO_3 эффекта фотоиндуцированного поглощения была предложена двухцентровая модель [3], принимающая в рассмотрение дополнительно мелкий ловушечный уровень. В 1995 г. была введена "трехвалентная" модель [4], в которой один донорный центр может существовать в трех различных зарядовых состояниях. Данная модель позволила успешно описать фотоиндуцированное поглощение и фотопроводимость в кристаллах $\text{KNbO}_3:\text{Fe}$ и $\text{KTN}:\text{Fe}$ [4–7]. В работе [8] для описания наблюдаемой экспериментально динамики фотоиндуцированного поглощения в нелегированном кристалле $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ использована модель, рассматривающая одновременно "трехвалентные" центры и мелкие ловушки.

Настоящая работа посвящена теоретическому анализу фоторефрактивного отклика в рамках последней модели. В ней показано, что наблюдаемые ранее эффекты немонотонной динамики дифракционной эффективности [9–12] и проявления скрытого изображения [13] могут быть объяснены взаимодействием зарядовых решеток, формирующихся на однократно и двукратно ионизированных донорах и на мелких ловушках.

1. Теоретическая модель

Энергетическая диаграмма рассматриваемой нами модели [8] показана на рис. 1. Здесь глубокие доноры D могут находиться в трех зарядовых состояниях: 0, 1+ и 2+, а ловушечный уровень S — в состояниях 0

и 1–. Данная модель предполагает отсутствие двукратно ионизированных донорных центров D_{2+} и заполненных мелких ловушек S_- в темновых условиях. Уровень S_- может опустошаться за счет термической генерации носителей заряда в зону проводимости. Под действием света центры D , D_+ и S_- ионизируются, отдавая электроны в зону проводимости, где последние перемещаются под действием диффузии или дрейфа до рекомбинации на дефектах D_+ , D_{2+} и S_0 .

Математически данные процессы можно описать следующей системой материальных уравнений:

$$\frac{\partial N_D^{1+}}{\partial t} = S_D I (N_D - N_D^{1+} - N_D^{2+}) - \gamma_1 n N_D^{1+} + \gamma_2 n N_D^{2+} - S_1 I N_D^{1+}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial N_D^{2+}}{\partial t} = S_1 I N_D^{1+} - \gamma_2 n N_D^{2+}, \quad (2)$$

$$\frac{\partial M}{\partial t} = -(S_T I + \beta) M + \gamma_T n (M_T - M), \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (N_D^{1+} + 2N_D^{2+} - M - n) + \frac{1}{e} \nabla (e \mu n E + \mu k_B T \nabla_n) = 0, \quad (4)$$

$$\nabla E = -\frac{e}{\epsilon} (n - N_D^{1+} - 2N_D^{2+} + N_A + M), \quad (5)$$

где N_d , M_T и N_A — общие концентрации доноров, мелких ловушек и акцепторов, N_D^{1+} , N_D^{2+} , M и n — концентрации однократно и двукратно ионизированных доноров, заполненных мелких ловушек и электронов соответственно, S_D , S_1 , S_T и γ_1 , γ_2 , γ_T — сечения фотоионизации и постоянные рекомбинации для нейтральных (D), однократно (1) и двукратно (2) ионизированных доноров и мелких довушек (T), β — коэффициент термического возбуждения мелких ловушек, μ — подвижность электронов, k_B — постоянная Больцмана, T — температура, e — элементарный электрический заряд, ϵ — статическая диэлектрическая проницаемость кристалла.

Рассмотрим поле пространственного заряда, которое формируется в процессе интерференции двух световых

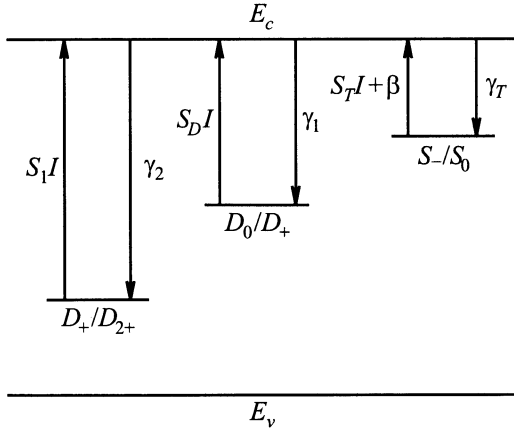


Рис. 1. Схема электрических уровней в запрещенной зоне кристалла с глубокими донорными центрами, которые могут находиться в трех зарядовых состояниях (D_0 , D_+ и D_{2+}), и мелкими ловушками (S_0 и S_-). Стрелками показаны возможные переходы при фотовозбуждении, термической генерации и рекомбинации.

пучков (опорного и сигнального) с интенсивностями I_R и I_S . Распределение интенсивности в кристалле будет иметь вид

$$I = I_0 [1 + m \cos(Kz)], \quad (6)$$

где $I_0 = I_R + I_S$ — средняя интенсивность, $m = 2\sqrt{I_R I_S}/I_0$ — глубина модуляции интерференционной картины, $|\mathbf{K}| = K = 2\pi/\Lambda$ — модуль вектора решетки, Λ — ее пространственный период. Векторы решетки $\mathbf{K} = Kz_0$ и внешнего приложенного поля $\mathbf{E}_0 = E_0 z_0$ считаем направленными вдоль оси z координатной системы. В приближении малых контрастов ($m \ll 1$) интерференционной картины, формирующей фоторефрактивную решетку, система уравнения (1)–(5) может быть линеаризована путем разложения неизвестных функций $N_D^{1+}(z, t)$, $N_D^{2+}(z, t)$, $M(z, t)$, $n(z, t)$ и $E(z, t)$ в ряд Фурье. Уравнения, описывающие динамику поведения нулевых и первых пространственных гармоник зарядовых решеток в кристалле, имеют вид

$$\frac{dN_0^{2+}}{dt} = S_1 I_0 N_0^{1+} - \gamma_2 n_0 N_0^{2+}, \quad (7)$$

$$\frac{dM_0}{dt} = -(S_T I_0 + \beta) M_0 + \gamma_T n_0 (M_T - M_0), \quad (8)$$

$$N_0^{1+} = N_A + M_0 - 2N_0^{2+}, \quad (9)$$

$$n_0 = \frac{S_D I_0 (N_D - N_0^{1+} - N_0^{2+}) + S_1 I_0 N_0^{1+} + (S_T I_0 + \beta) M_0}{\gamma_1 N_0^{1+} + \gamma_T (M_T - M_0) + \gamma_2 N_0^{2+}}, \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_1^{1+}}{dt} = & m I_0 [S_D (N_D - N_0^{1+} - N_0^{2+}) - S_1 N_0^{1+}] \\ & - [(S_D + S_1) I_0 + \gamma_1 n_0] N_1^{1+} - (S_D I_0 - \gamma_2 n_0) N_1^{2+} \\ & - (\gamma_1 N_0^{1+} - \gamma_2 N_0^{2+}) n_1, \end{aligned} \quad (11)$$

$$\frac{dN_1^{2+}}{dt} = m I_0 S_1 N_0^{1+} + S_1 I_0 N_1^{1+} - \gamma_2 n_0 N_1^{2+} - \gamma_2 N_0^{2+} n_1, \quad (12)$$

$$\frac{dM_1}{dt} = -m I_0 S_T M_0 - [(S_T I_0 + \beta) + \gamma_T n_0] M_1 + \gamma_T (M_T - M_0) n_1, \quad (13)$$

$$\begin{aligned} n_1 = & \left\{ m I_0 [S_D (N_D - N_0^{1+} - N_0^{2+}) + S_1 N_0^{1+} + S_T M_0] \right. \\ & - \left[(S_D - S_1) I_0 + \gamma_1 n_0 - \frac{1}{\tau_{di}} \right] N_1^{1+} \\ & - \left(S_D I_0 + \gamma_2 n_0 - 2 \frac{1}{\tau_{di}} \right) N_1^{2+} \\ & + \left(S_T I_0 + \beta + \gamma_T n_0 - \frac{1}{\tau_{di}} \right) M_1 \left. \right\} \\ & \times \left\{ K^2 \mu k_B T / e - i K \mu E_0 + \gamma_1 N_0^{1+} \right. \\ & \left. + \gamma_2 N_0^{2+} + \gamma_T (M_T - M_0) \right\}^{-1}, \end{aligned} \quad (14)$$

где $\tau_{di} = \epsilon / \mu e n_0$ — время диэлектрической релаксации. Данные уравнения получены в предположении низкой интенсивности света I_0 , когда концентрация электронов n удовлетворяет неравенствам $N \ll N_D$, $n \ll M$ и $N \ll N_A$, и для адиабатического приближения, когда $\partial n / \partial t = 0$. Система уравнений (7)–(10) для нулевых гармоник является замкнутой и не содержит амплитуд первых пространственных гармоник и приложенного внешнего поля. Ее решение должно быть известно для нахождения первых гармоник N_1^{1+} , N_1^{2+} , M_1 и n_1 из уравнений (11)–(14). Применяемая нами методика численного анализа данных систем давала возможность изменять период дифракционной решетки Λ , длительность процессов записи, хранения и проявления голограмм и амплитуду прикладываемого внешнего постоянного электрического поля E_0 . Ее использование позволяло ”включать” и ”выключать” световые пучки накачки I_R и сигнала I_S , их взаимную когерентность и внешнее электрическое поле E_0 в произвольные моменты времени. Из вычисленных амплитуд первых гармоник зарядовых решеток в соответствии с выражением (5) можно найти амплитуду поля пространственного заряда в кристалле в виде

$$E_1(t) = -i \frac{e}{\epsilon K} [N_1^{1+}(t) + 2N_1^{2+}(t) - M_1(t) - n_1(t)]. \quad (15)$$

2. Результаты расчетов и обсуждение

Для расчета зависимостей, характеризующих динамику фоторефрактивного отклика, можно воспользоваться наборами материальных параметров, приведенными в работе [8]. Эти параметры были получены при подгонке теоретических зависимостей, описывающих эволюцию фотоиндуцированного поглощения после освещения образца и его релаксацию в темноте, под экспериментальные данные для кристалла $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$. Нами найдены и другие совокупности параметров, которые хорошо

Материальные параметры фоторефрактивных кристаллов с двукратно ионизируемыми донорными центрами и мелкими ловушками, используемые в расчетах

Материальный параметр	Значения параметров для различных концентраций мелких ловушек		
	[8]	Наст. работа	
M_T, m^{-3}	10^{25}	10^{24}	10^{23}
M_D, m^{-3}	10^{25}	10^{25}	10^{25}
N_A, m^{-3}	10^{22}	$2.5 \cdot 10^{22}$	$4 \cdot 10^{22}$
$S_D, \text{m}^2/\text{J}$	$4.9 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-7}$	$1.5 \cdot 10^{-7}$
$S_T, \text{m}^2/\text{J}$	10^{-4}	$32.5 \cdot 10^{-4}$	$30.5 \cdot 10^{-4}$
$S_1, \text{m}^2/\text{J}$	$2.5 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-6}$
$\gamma_1, \text{m}^3/\text{s}$	$3.5 \cdot 10^{-17}$	$0.8 \cdot 10^{-17}$	$0.8 \cdot 10^{-17}$
$\gamma_T, \text{m}^3/\text{s}$	$2.6 \cdot 10^{-17}$	$6 \cdot 10^{-17}$	$2.2 \cdot 10^{-15}$
$\gamma_2, \text{m}^3/\text{s}$	$4.9 \cdot 10^{-18}$	$1.2 \cdot 10^{-18}$	$5 \cdot 10^{-19}$
β, s^{-1}	$5.5 \cdot 10^{-5}$	$5.5 \cdot 10^{-4}$	$5.5 \cdot 10^{-4}$

описывают приведенные авторами [8] временные зависимости изменения коэффициента поглощения при освещении кристалла. Используемые далее в численных расчетах материальные параметры приведены в таблице. Подвижность носителей заряда принималась равной $\mu = 2 \cdot 10^{-6} \text{m}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$.

Считалось, что кристалл до его засветки в момент времени $t = 0$ пучками сигнала и накачки находился в темноте. Это соответствует начальным условиям $N_0^{1+}(0) = N_A$, $N_0^{2+}(0) = 0$ и $M_0(0) = 0$, которые и использовались нами при численном интегрировании системы уравнений (7)–(10). Формирование зарядовых решеток начиналось после "включения" взаимной когерентности пучков в момент времени $t_c \geq 0$.

Типичные зависимости, характеризующие динамику изменения поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки с периодом $\Lambda = 10 \mu\text{m}$ и контрастом $m = 0.1$ при изменении условий ее записи пучками с суммарной интенсивностью $I_0 = 10 \text{mW}/\text{cm}^2$ в кристалле с параметрами, взятыми из работы [8], представлены на рис. 2–5. При "включении" взаимной когерентности пучков одновременно с освещением кристалла ($t_0 = t_c = 0$, рис. 2–4 и кривая 1 на рис. 5) формирование поля пространственного заряда, происходящего за счет диффузионного механизма, носит немонотонный характер. Если же когерентность "включается" позже, например при $t_c = 2000 \text{s}$ (кривая 2 на рис. 5), то наблюдается более быстрый рост поля решетки на начальном участке. Далее происходит его медленное нарастание, продолжающееся до момента "выключения" когерентности при $t_i = 2800 \text{s}$. Немонотонность временной зависимости связана с тем, что формирование зарядовых решеток происходит в первом случае в существенно нестационарных условиях. В начальный период времени средние концентрации центров N_0^{1+} , N_0^{2+} , M_0 и электронов n_0 (рис. 6) испытывают сильные изменения, а для $t > 2000 \text{s}$ они практически выходят на стационарный уровень. Бо-

лее быстрый рост амплитуды решетки во втором случае обусловлен большей концентрацией электронов в зоне проводимости. Отметим, что нестационарная фотопроводимость, наблюдаемая в рассматриваемом случае на начальном этапе засветки кристалла, была указана в качестве причины немонотонности динамики поля пространственного заряда в работах [14,15].

На временных зависимостях амплитуды поля пространственного заряда, наблюдаемых после "выключения" взаимной когерентности пучков в момент времени t_i (рис. 2–5), можно выделить два характерных участка. Быстрое падение амплитуды на начальной стадии стирания решетки происходит за время, сравнимое с $\tau_{\text{di}} \approx 15 \text{s}$. Процесс диэлектрической релаксации

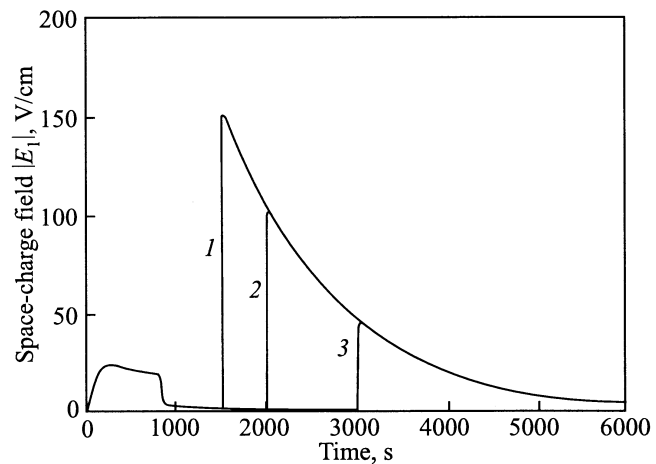


Рис. 2. Временные зависимости поля пространственного заряда фоторефрактивной решетки с периодом $\Lambda = 10 \mu\text{m}$ после освещения кристалла взаимно когерентными пучками сигнала и накачки с общей интенсивностью $I_0 = 10 \text{mW}/\text{cm}^2$ в момент времени $t_c = 0$, "включения" взаимной когерентности при $t_i = 800 \text{s}$ и приложения постоянного электрического поля с амплитудой $E_0 = 17.5 \text{kV}/\text{cm}$ в моменты времени $t_e = 1500$ (1), 2000 (2) и 3000 (3).

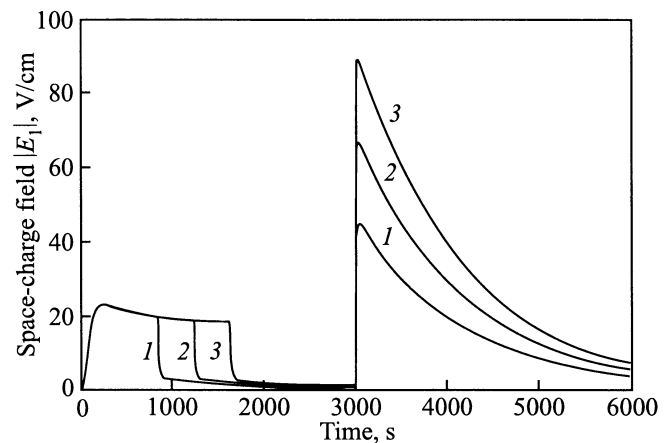


Рис. 3. То же, что на рис. 2, при $t_c = 0$, $t_e = 3000 \text{s}$ и $t_i = 800$ (1), 1200 (2), 1600 (3).

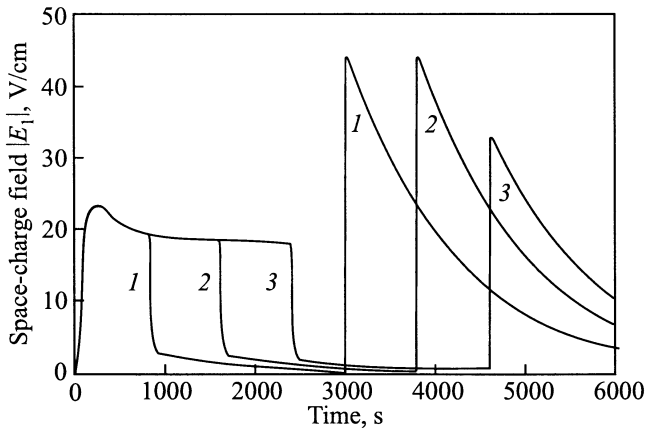


Рис. 4. То же, что на рис. 2, при $t_c = 0$, $t_i = 800$ s, $t_e = 3000$ s (1); $t_c = 0$, $t_i = 1600$ s, $t_e = 3800$ s (2); $t_c = 0$, $t_i = 2400$ s, $t_e = 4600$ s (3).

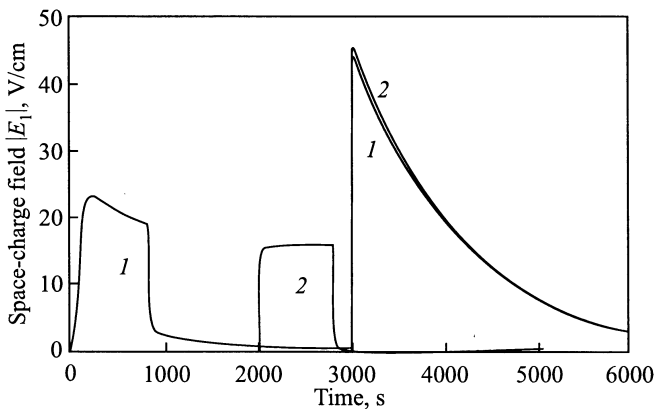


Рис. 5. То же, что на рис. 2, при $t_e = 3000$ s и $t_c = 0$, $t_i = 800$ s (1); $t_c = 2000$ s, $t_i = 2800$ s (2).

резко понижает разность амплитуд зарядовых решеток $[N_1^{1+} + 2N_1^{2+} - M_1]$. Однако, как следует из рис. 7, сами амплитуды за это время уменьшаются незначительно. Далее наблюдается медленное падение поля пространственного заряда, скорость которого определяется релаксацией зарядовых решеток (ср. рис. 2–5 и 7).

Приложение к кристаллу в некоторый момент времени $t_e > t_i$ постоянного электрического поля не приводит к изменениям в динамике релаксации амплитуд зарядовых решеток (рис. 7). Однако амплитуда поля пространственного заряда после включения внешнего поля возрастает с постоянной времени, близкой к времени диэлектрической релаксации τ_{di} (рис. 2–5). Амплитуда поля решетки в максимуме зависит от времени ”включения” и ”выключения” взаимной когерентности пучков t_c и t_i , а также от момента приложения поля t_e . Для представленных на рис. 2–5 условий формирования, стирания и ”проявления” решетки ее амплитуда всегда превышает начальное значение, связанное с диффузионным механизмом разделения зарядов. Такое поведение поля пространственного заряда связано с пространственным

сдвигом относительно друг друга зарядовых решеток, соответствующих однократно и двукратно ионизированным донорам и мелким ловушкам, под действием приложенного напряжения. Это хорошо видно из рис. 8, на котором показана динамика сдвига решеток с амплитудами N_1^{1+} , N_1^{2+} и M_1 вдоль координаты z относительно их первоначального положения после включения внешнего поля. Основной причиной сдвига решеток является неопределенность тока проводимости, обусловленная пространственной модуляцией проводящих свойств кристалла. В соответствии с формулой (14) первая

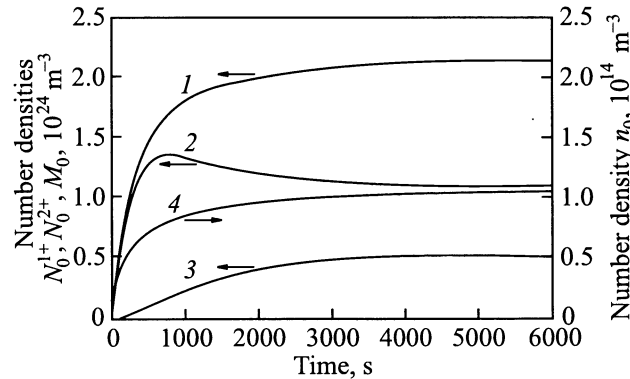


Рис. 6. Временные зависимости средних концентраций мелких ловушек $M_0(t)$ (1), однократно ионизированных доноров $N_0^{1+}(t)$ (2), двукратно ионизированных доноров $N_0^{2+}(t)$ (3) и электронов $n_0(t)$ (4) после освещения кристалла пучками сигнала и накачки с общей интенсивностью $I_0 = 10$ mW/cm².

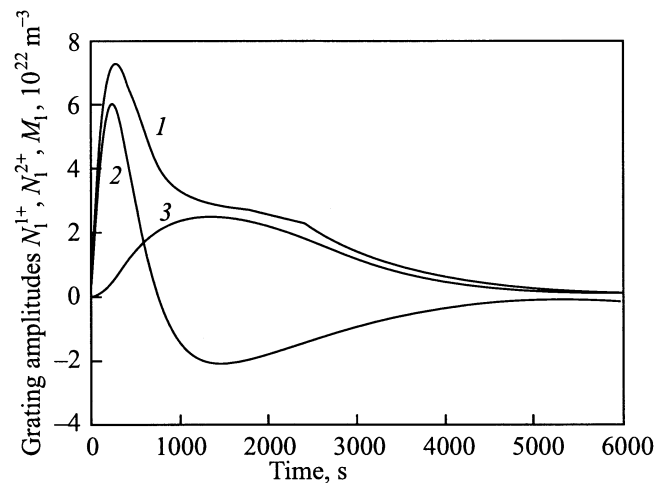


Рис. 7. Эволюция амплитуд зарядовых решеток, формирующихся на мелких ловушках $M_1(t)$ (1), однократно ионизированных донорах $N_1^{1+}(t)$ (2) и двукратно ионизированных донорах $N_1^{2+}(t)$ (3). Кристалл освещается взаимно когерентными пучками сигнала и накачки с общей интенсивностью $I_0 = 10$ mW/cm² в момент времени $t_c = 0$, ”выключение” взаимной когерентности происходит при $t_i = 2400$ s. Приложение постоянного электрического поля с амплитудой $E_0 = 17.5$ kV/cm в момент времени $t_e = 4600$ s не приводит к заметным изменениям амплитуд зарядовых решеток.

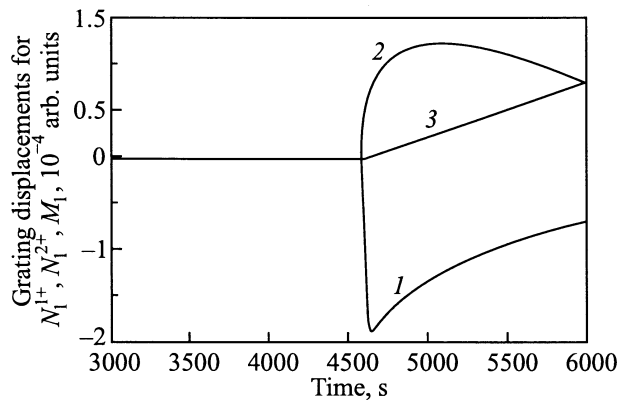


Рис. 8. Временные зависимости пространственного сдвига зарядовых решеток на мелких ловушках (1), однократно (2) и двукратно (3) ионизированных донорах вдоль оси z относительно их первоначального положения. Постоянное электрическое поле с амплитудой $E_0 = 17 \text{ kV/cm}$ приложено в момент времени $t_e = 4600 \text{ s}$. Условия формирования решеток такие же, как для зависимостей на рис. 7. Ось ординат — в долях периода решетки.

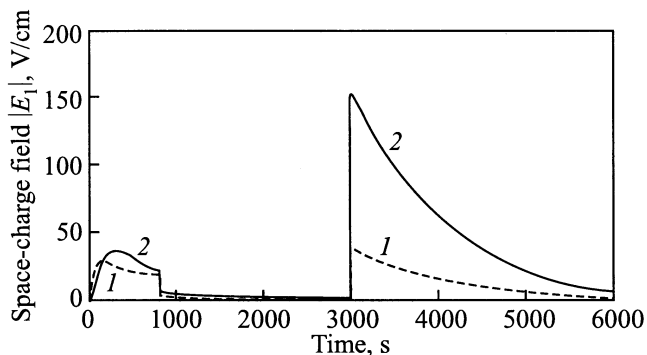


Рис. 9. То же, что для кривой 3 на рис. 2, при $M_T = 10^{24}$ (1) и 10^{23} m^{-3} (2).

пространственная гармоника концентрации электронов в зоне проводимости отлична от нуля и в отсутствие неоднородного освещения, при $m = 0$. В рассматриваемой модели пространственная неоднородность проводимости связана с модуляцией таких параметров кристалла, как коэффициент поглощения и время жизни носителей заряда. Такая трактовка полученных результатов качественно согласуется с подходом к описанию процессов, наблюдаемых в кристалле $\text{Be}_{12}\text{SiO}_{20}$ при записи фоторефрактивных решеток в знакопеременном поле, их хранении в отсутствие поля, но в присутствии опорного пучка и при проявлении после выключения поля [15]. Здесь предполагается, что оптическая информация в кристалле может храниться в виде решетки фоточувствительности, имеющей длительное время релаксации даже в условиях однородного освещения. Авторы [15] связывают решетку фоточувствительности с пространственной модуляцией таких параметров кристалла, как коэффициент погло-

щения света, время жизни или подвижность носителей заряда и квантовый выход.

После достижения максимального значения поле пространственного заряда релаксирует с постоянной времени, близкой к скорости распада зарядовых решеток (ср. рис. 2–5 и 7 при $t > t_e$). Представленные на рис. 2–8 результаты относятся к кристаллу с очень большой концентрацией мелких ловушек ($M_T = 10^{25} \text{ m}^{-3}$). Наблюдаемые экспериментально в кристалле $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ временные зависимости роста фотоиндуцированного поглощения после освещения образца [8] могут быть описаны и для меньших концентраций, например для $M_T = 10^{23} \text{ m}^{-3}$, но при существенно больших значениях сечения фотоионизации $S_T = 3.05 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3/\text{J}$ и коэффициента двухчастичной рекомбинации $\gamma_T = 2.2 \cdot 10^{-15} \text{ m}^3/\text{s}$, чем для кристаллов с большой концентрацией мелких ловушек (см. таблицу). Временные изменения поля пространственного заряда в кристаллах с концентрацией $M_T = 10^{24}$ (кривая 1) и 10^{23} m^{-3} (кривая 2) представлены на рис. 9 для тех же условий, что кривая 3 на рис. 2. Отметим, что качественно процессы записи, стирания и проявления решеток в кристаллах с используемыми параметрами не различаются. Однако в кристалле с наименьшей концентрацией мелких ловушек процесс релаксации в условиях однородной засветки является наиболее медленным.

Таким образом, в настоящей работе показана возможность описания процессов "проявления" голографических решеток в фоторефрактивных кристаллах в рамках модели зонного переноса, включающей в рассмотрение однократно и двукратно ионизированные доноры и мелкие ловушечные центры.

Список литературы

- [1] М.П. Петров, С.И. Степанов, А.В. Хоменко. Фоторефрактивные кристаллы в когерентной оптике. СПб (1992). 320 с.
- [2] N.V. Kukhtarev, V.B. Markov, S.G. Odulov, M.S. Soskin, V.L. Vinetskii. *Ferroelectrics* **22**, 949 (1979).
- [3] G.A. Brost, R.A. Motes, J.R. Rotge. *J. Opt. Soc. Am.* **B5**, 1879 (1988).
- [4] K. Buse, E. Krätzig. *Appl. Phys.* **B61**, 27 (1995).
- [5] K. Buse, S. Loheide, D. Sabbert, E. Krätzig. *J. Op. Soc. Am.* **B13**, 2644 (1996).
- [6] K. Buse. *Appl. Phys.* **B64**, 391 (1997).
- [7] K. Buse. *Appl. Phys.* **B64**, 273 (1997).
- [8] O.V. Kobozev, S.M. Shandarov, A.A. Kamshilin, V.V. Prokofiev. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **1**, 442 (1999).
- [9] A.A. Камшилин, М.П. Петров. *ФТТ* **23**, 10, 3110 (1981).
- [10] S.G. Odoulov, K.V. Shcherbin, A.N. Shumelyuk. *J. Opt. Soc. Am.* **B11**, 1780 (1994).
- [11] M. Miteva, L. Nicolova. *Opt. Commun.* **67**, 192 (1988).
- [12] S. Zhivkova, M. Miteva. *Opt. Commun.* **86**, 449 (1991).
- [13] М.П. Петров, М.Г. Шмелин, Н.О. Шалаевский, В.М. Петров, А.В. Хоменко. *ЖТФ* **55**, 6, 2247 (1985).
- [14] А.И. Грачев. *ФТТ* **41**, 6, 1012 (1999).
- [15] A.I. Grachev, A.A. Kamshilin, O.V. Kobozev, V.V. Prokofiev. *Int. Sci. Conf. "Optics of Crystals" (OC-2000)*. Mazyr, Belarus. Abstracts. P. 17.