

УДК 517.8:537.635

МЕХАНИЗМ ФЛУКТУАЦИЙ ФОТОПРОВОДИМОСТИ В КРИСТАЛЛАХ МОЛИБДАТА СВИНЦА

Н.Р.АГАМАЛЯН, Э.С.ВАРТАНЯН, Р.К.ОВСЕПЯН, А.Р.ПОГОСЯН

Институт физических исследований НАН Армении

(Поступила в редакцию 20 марта 1996)

Экспериментально обнаружено резкое повышение флуктуаций тока фотопроводимости в кристаллах молибдата свинца при определенном значении интенсивности возбуждающего излучения. Предложен механизм, объясняющий возникновение аномально больших флуктуаций тока фотопроводимости в кристаллах молибдата свинца на основе квадратичного закона рекомбинации фотоэлектронов с учетом пространственно-временной зависимости тока фотопроводимости. Наблюдаемые в эксперименте аномально большие флуктуации тока фотопроводимости объясняются возникновением в фотопроводнике одномерного солитона.

Кристаллы молибдата свинца имеют структуру шеелита и относятся к диэлектрикам с шириной запрещенной зоны $\sim 3,3$ eV. Однако экспериментальные исследования обнаружили в них множество интересных свойств, присущих полупроводникам [1]. Эти кристаллы имеют высокую фотопроводимость [2], и при освещении в них наблюдается вольт-амперная характеристика N-типа [3]. Интенсивная фотопроводимость наблюдается при освещении кристаллов светом с энергией фотона меньше ширины запрещенной зоны [1,2]. Возможно, это связано с наличием в запрещенной зоне подзоны, расположенной выше валентной зоны на $-0,7$ eV. В представленной работе исследовалась динамика тока фотопроводимости при различных интенсивностях возбуждающего света. На основе стохастического метода предложена модель, качественно описывающая характер флуктуаций тока фотопроводимости в кристаллах молибдата свинца.

1. Методика измерений и полученные результаты

Измерения проводились на номинально чистых и легированных ионами железа кристаллах молибдата свинца, выращенных методом Чохральского из шихты строго стехиометрического состава,

приготовленной твердофазным синтезом по специальной технологии [4]. Образцы для измерений имели форму параллелепипеда с размерами $10 \times 10 \times 2 \text{ мм}^3$. Алюминиевые электроды наносились на грани, перпендикулярные тетрагональной оси, свет проходил через две другие грани. Кристалл молибдата свинца освещался непрерывным излучением аргонового лазера с $\lambda = 488 \text{ нм}$. Плотность мощности освещающего лазерного излучения регулировалась при помощи ослабителя и изменялась в диапазоне $0-10 \text{ W/cm}^2$. К кристаллу прикладывалось внешнее постоянное электрическое поле (50 V). Электрический сигнал регистрировался с помощью усилителя постоянного тока или усилителя переменного тока с полосой пропускания $0,01-150 \text{ kHz}$ и входным импедансом $100 \text{ M}\Omega$ и 5 pF . При использовании усилителя переменного тока экспериментальная схема регистрировала флуктуации фотопроводимости и не реагировала на токи фотопроводимости, т. к. усилитель не пропускал нулевую частоту. При плавном изменении интенсивности освещающего излучения в некотором диапазоне наблюдалось резкое возрастание амплитуды незатухающих флуктуаций тока фотопроводимости. Вместе с тем измерялась зависимость тока фотопроводимости от интенсивности освещения с применением усилителя постоянного тока. Полученные результаты приведены на рис. 1. Зависимость постоянной составляющей тока фотопроводимости от интенсивности имеет явно выраженный бистабильный характер [5].

2. Обсуждение результатов

Аномальное увеличение флуктуаций тока фотопроводимости кристалла молибдата свинца можно объяснить на основе балансного уравнения для фотоэлектронов. Обозначая через $n(t)$ концентрацию фотоэлектронов, фотоионизированных из подзоны в зону проводимости, можно записать балансное уравнение в виде [6]

$$\frac{dn}{dt} = an + bn^2 + F, \quad (1)$$

где a и b – коэффициенты, характеризующие мономолекулярную и бимолекулярную рекомбинацию фотоэлектронов из зоны проводимости; $F = kl$ является скоростью генерации фотоэлектронов в зону проводимости, k – коэффициент поглощения с учетом квантового выхода, l – интен-

сивность освещающего излучения; $a < 0$, $b < 0$ и $F > 0$.

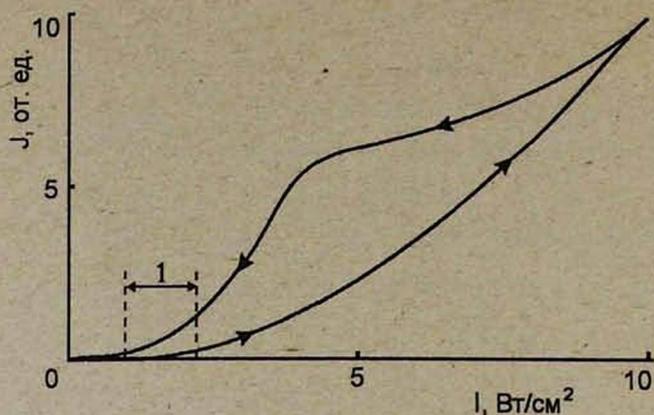


Рис.1 Зависимость тока фотопроводимости J от интенсивности освещающего излучения I . (1—область интенсивностей с аномально большими флуктуациями).

Перенормировав управляющие параметры a , F и переменную $n(t)$ по отношению к управляющему параметру b , приведем уравнение (1) к канонической форме и тогда получим уравнение с двумя новыми управляющими параметрами (a и F). Проинтегрировав это уравнение, получим

$$n(t) = \frac{p + qn_0 \exp[t(q - p)]}{1 + n_0 \exp[t(q - p)]} ; \quad p \neq q, \quad (2)$$

где n_0 — константа, определяющая начальное значение $n(0) = (p + qn_0)/(1 + n_0)$ концентрации фотоэлектронов; $p > q$ — корни полинома уравнения (1). Выражение (2) в случае, когда $t \rightarrow \infty$, имеет два стационарных решения $n_s = p$; q . Когда $n_s = q$, система глобально неустойчива, а когда $n_s = p$, система асимптотически и глобально устойчива.

На рис.2 представлена форма многообразия стационарных состояний n_s от управляющих параметров (a и F) и проекция критических точек этого многообразия на плоскость управляющих параметров. Точки на поверхности 2 формы многообразия соответствуют глобально неустойчивым, а на поверхности 1 — асимптотически и глобально устойчивым состояниям динамической системы. Область существования

двух действительных корней выражения (1) заканчивается на линии сепаратрисы 3 (рис.2). Согласно [7], эта форма многообразия называется катастрофой типа складки, или катастрофой A_2 ,

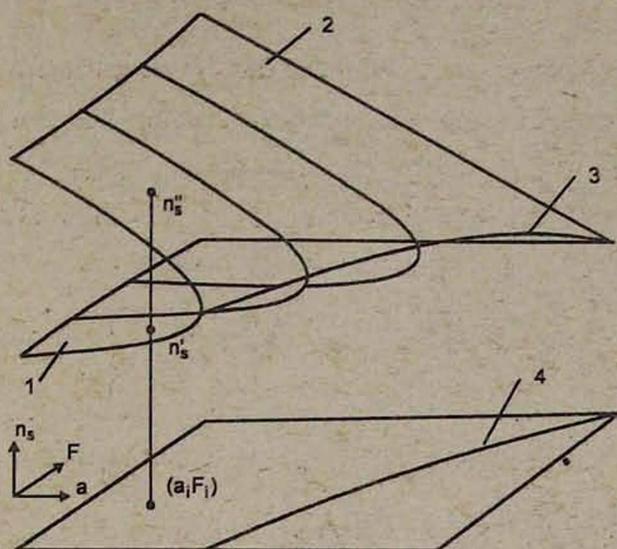


Рис.2. Форма многообразия состояний фотоэлектронов в пространстве управляющих параметров $(n-a-F)$. Все точки на нижней поверхности (1) этого многообразия представляют асимптотически устойчивые состояния, а точки на верхней поверхности (2) – неустойчивые состояния. Верхняя и нижняя поверхности сходятся и имеют сепаратрису (3), которая спроектирована (4) на плоскость управляющих параметров $(a-F)$.

Из рис.2 видно, что при фиксированных значениях управляющих параметров a_i и F_i возможны два стационарных состояния концентрации фотоэлектронов n_s' и n_s'' , и это приводит к двум значениям фототока. При увеличении интенсивности освещения (управляющий параметр F) и фиксированном значении управляющего параметра a_i может реализоваться ситуация, когда эти состояния приближаются настолько, что величина разделяющего их энергетического барьера становится меньше или порядка флуктуаций динамической системы. И тогда становится возможным самопроизвольный переход из одного состояния в другое. Далее мы рассмотрим именно такое поведение. Описанная в нашем эксперименте диссипативная система непрерывно подвергается воздействию флуктуаций



лазерного излучения. С учетом этого уравнение (1) становится стохастическим дифференциальным уравнением вида

$$\frac{dn}{dt} = n^2 + an + F + \zeta(t), \quad (3)$$

где $\zeta(t)$ — флуктуирующая компонента интенсивности лазерного излучения. Учитывая, что минимальное время наблюдения больше времени когерентности лазера [8], флуктуации подчиняются условиям Гаусса-Маркова с $\langle \zeta(t) \rangle = 0$. Проанализируем уравнение (1) с помощью теории катастроф [7]. Это уравнение можно представить как

$$\frac{\partial n(t)}{\partial t} = - \frac{\partial V(n, a, F)}{\partial n} \quad (4)$$

Уравнение (4) согласно этой теории является уравнением автономной динамической системы "возбуждающее излучение-фотопроводник", где

$V(n, a, F) = \frac{1}{3}n^3 + \frac{a}{2}n^2 + Fn$ является потенциальной функцией

динамической системы. Стохастические динамические системы описываются вероятностной функцией распределения $P(n, a, F)$, которая связана с потенциальной функцией $V(n, a, F)$ посредством уравнения Фоккера-Планка. В том случае, когда управляющие параметры не изменяются и потенциальная функция не зависит от времени, уравнение Фоккера-Планка имеет стационарно-экспоненциальное решение вида

$$P(n, a, F) = N \exp\left[\frac{1}{Q} V(n, a, F)\right],$$

где Q — константа, описывающая диффузию динамической системы в фазовом пространстве в направлении с меньшей энергией, и обусловленная флуктуациями лазера $2Q\delta(t-t') = \langle \zeta(t)\zeta(t') \rangle$. С учетом потенциальной функции получим

$$P(n, a, F) = N \exp\left[\frac{1}{Q} \left(\frac{1}{3}n^3 + \frac{a}{2}n^2 + Fn\right)\right]. \quad (5)$$

Из распределения (5) можно рассчитать дисперсию $\langle \Delta n^2 \rangle$ флуктуаций фотоэлектронов. При $p \rightarrow q$ кривизна потенциальной функции стремится

к нулю, поэтому дисперсия в окрестности этой точки достигает аномально большого значения и может быть представлена гамма-функцией:

$$\langle \Delta n^2 \rangle = (3Q)^{1/3} \Gamma(3/4).$$

Между двумя близкими по энергиям стационарными состояниями (p и q близки по значению, но не равны) связь осуществляется с помощью флуктуаций. Временная зависимость вероятностной функции распределения фотоносителей (5) имеет два временных масштаба: T_1 – время релаксации системы к локальному минимуму и T_2 – время релаксации из метастабильного минимума в глобальный минимум. Согласно [9], для динамических систем T_1 и T_2 имеют вид:

$$T_1 = \frac{1}{\lambda}; \quad T_2 = \frac{2\pi}{\sqrt{|\lambda_1 \lambda_2|}} \exp\left(\frac{\Delta V}{Q}\right),$$

где λ_1 и λ_2 – кривизна потенциальной функции в локальном минимуме и максимуме, соответственно; $\Delta V = V_{max} - V_{min}$. В динамических системах, в которых выполняется условие $\Delta V/Q \geq 1$, существуют два сильно отличающихся временных масштаба, т.е. $T_2 \gg T_1$. Резкое увеличение флуктуаций можно объяснить уменьшением времени T_2 до значений, когда $1/T_2$ входит в диапазон частот полосы усилителя. В описанной динамической системе уменьшение временного масштаба T_2 происходит вследствие уменьшения ΔV . Наблюдаемые аномально большие флуктуации обусловлены многократными переходами системы из одного состояния в другое в течение экспериментального масштаба времени.

Если в первой части настоящей статьи рассматривается только временная зависимость тока фотопроводимости в приближении пространственно однородного распределения фотоэлектронов, то далее перейдем к обсуждению одномерной пространственно-временной зависимости тока фотопроводимости. Дополним уравнение (1) двумя пространственными компонентами, описывающими диффузию и дрейф фотоэлектронов. Тогда дифференциальное уравнение будет иметь вид

$$\frac{\partial n(x,t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 n(x,t)}{\partial x^2} + H \frac{\partial n(x,t)}{\partial x} + n^2(x,t) + an(x,t) + F, \quad (6)$$

где $H = \mu E$, E – напряженность внешнего поля, μ – подвижность, D – коэффициент диффузии и H – дрейфовая скорость фотоэлектронов. Из-за невозможности прямого аналитического решения уравнения (6) найдем его решение в виде стационарной волны, зависящей лишь от бегущей координаты $\xi = x - vt$. С учетом потенциальной функции динамической системы уравнение (6) запишется в виде

$$D \frac{d^2 n}{d\xi^2} + (v + H) \frac{dn}{d\xi} = - \frac{dV(n, a, F)}{dn}. \quad (7)$$

Уравнение (7) является уравнением для нелинейного осциллятора с затуханием. Состояние равновесия этой системы находят из условия $\nabla V = 0$, и точками равновесия являются $n_1 = p$ и $n_2 = q$. Для определения типа состояния равновесия составим характеристическое уравнение $Ds^2 + (v + H)s + (n_{1,2} - a) = F$. Это уравнение получено в приближении $n = n_{1,2} + \exp(s\xi)$. При этом состояниями равновесия являются: n_1 – седло, n_2 – узел при условии $[(v + H)^2 - 4Da] > 0$ и n_2 – фокус при условии $[(v + H)^2 - 4Da] < 0$.

Решение уравнения (7) имеет вид солитона [10], если фазовый портрет системы имеет вид фокуса, т.е. когда выполняется условие $[(v + H)^2 - 4Da] < 0$:

$$n(x, t) = 3a \{ \text{ch}^{-2} [(a/D)^{1/2} (x + Ht)] \}. \quad (8)$$

Из решения (8) следует, что бегущая волна может распространяться со скоростью H_0 и выше. Существование минимальной скорости распространения солитона H_0 является следствием того, что фотопроводники – это диссипативные среды без дисперсии. Выражение (8) показывает, что в рассматриваемой модели пространственно-временной зависимости фотопроводимости существует стационарное решение в виде одномерного солитона [10], который неустойчив к флуктуациям и распадается на отдельные волны. Именно такие солитоны

наблюдаются в наших экспериментах при измерениях фотопроводимости кристаллов молибдата свинца.

Таким образом, с использованием стохастической модели и уравнения Фоккера-Планка предложен механизм возникновения аномально больших флуктуаций тока фотопроводимости, обусловленных флуктуациями лазерного излучения в кристаллах с квадратичной рекомбинацией фотоэлектронов. На основе пространственно-временных уравнений баланса для фотоэлектронов предложен механизм возникновения флуктуаций, обусловленных пространственным движением солитонов в фотопроводнике.

ЛИТЕРАТУРА

1. Е.Г.Реут. ФТТ, 23, 2514 (1981).
2. J.A.Groewink, D.A.van Weser. Phys.Stat.Sol., 49(a), 651 (1978).
3. Н.Р.Агамалян, Э.С.Вартанян, Р.К.Овсепян. Изв. НАН Армении, Физика, 29, 222 (1994).
4. Н.Р.Агамалян, Э.С.Вартанян, И.А.Гамбарян, Л.М.Казарян, Р.Б.Костанян, Р.С.Микаелян, Р.К.Овсепян. Докл. НАН РА, 95, 94 (1995).
5. Э.С.Вартанян, Р.К.Овсепян, А.Р.Погосян. Изв. АН Арм.ССР, Физика, 23, 56 (1988).
6. Р.Бьюб. Фотопроводимость твердых тел. М., ИИЛ, 1962.
7. Г.Гилмор. Прикладная теория катастроф. М., Мир, 1984.
8. У.Люиселли. Излучение и шумы в квантовой электронике. М., Наука, 1972.
9. R.Gilmore. Phys.Rev., A20, 2510 (1979).
10. Л.А.Тахтаджян, Л.Д.Фаддеев. Гамильтонов подход в теории солитонов. М., Наука, 1986.

MECHANISM OF PHOTOCONDUCTIVITY FLUCTUATIONS IN LEAD MOLYBDATE CRYSTALS

N.R.AGAMALYAN, E.S.VARTANYAN, R.K. HOVSEPYAN, A.R.POGOSYAN

A sharp increase of photoconductivity current fluctuations is observed experimentally in lead molybdate crystals for definite values of exciting radiation intensity. A mechanism explaining the arising of anomalously great fluctuations of photoconductivity current in lead molybdate crystals taking into account the spatial-temporal dependence of photoconductivity current is proposed on the base of quadratic law of photoelectrons recombination. The experimentally observed anomalously great fluctuations of photoconductivity current are explained by one-dimensional soliton arising in the photoconductor.

ՖՈՏՈԷԼԵԿՏՐԱԿԱՆ ՀԱՏԿՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ
ՅՈՒՐԱՀԱՏԿՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԸ ԿԱՊԱՐԻ ՍՈԼԻԲՐԱՏԻ
ԲՅՈՒՐԵՂՆԵՐՈՒՄ

Ն.Ռ.ԱՐԱՄԱԼՅԱՆ, Է.Ս.ՎԱՐԴԱՆՅԱՆ, Ռ.Կ.ՀՈՎԱՏԵՓՅԱՆ, Ա.Ռ.ՊՈՂՈՍՅԱՆ

Մոլիբդատի կապարի բյուրեղների ֆոտովոլտային հատկությունները հետազոտելիս հայտնաբերված են սիմետրիայի կենտրոն ունեցող բյուրեղների համար արգելված ֆոտովոլտային հոսանքներ, որոնք առաջանում են 488նմ ալիքի երկայություն ունեցող լույսով նրանց լուսավորելիս: Հոսանքների առաջացումը բացատրվում է կապարի մոլիբդատի բյուրեղներում սիմետրիայի կենտրոն չունեցող կոմպլեքսների առկայությամբ: