

Г. Л. Мирончук, П. П. Трохимчук  
ОСОБЕННОСТИ ФОРМИРОВАНИЯ ГАРМОНИК  
В РЕЛАКСАЦИОННОЙ ОПТИКЕ

**Введение**

Процесс формирования гармоник в нелинейной оптике, как правило, связан из примесным поглощением. Происходит мультифотонное поглощение света одним и тем же центром, который релаксирует через излучение одного фотона, который имеет соответственно энергию кванта в два-три раза больше, чем энергия излучения возбуждения [1]. Энергия излучения не обязательно должна быть кратной целому числу квантов поглощения. Этот эффект имеет высокую степень пространственной и временной когерентности и не всегда высокий квантовый выход.

Предлагается генерацию гармоник производить в области собственного поглощения, т. е. возбуждение производить в примесной области или в области поглощения на свободных электронах. А после перекачки энергии соответствующей интенсивности за счет многофотонных процессов возбудить валентные электроны. При этом релаксация может быть, как излучательной, генерация лазерного излучения с длиной волны облучаемого материала; так и безизлучательная, образование оборванных связей [2]. Генерацию при этом можно проводить как в импульсном, так и непрерывном режиме. Следует также учесть, что так как эффект излучения происходит на грани разрушения полупроводника, то необходимо накладывать очень жесткие условия на интенсивность возбуждения. В отличие от формирования гармоник на примесном поглощении, в данном случае менее жесткие условия накладываются на ориентацию кристалла при поглощении. В целом же этот эффект имеет более высокий квантовый выход и может использоваться при преобразовании как более интенсивных световых потоков в коротковолновую область, так и при минитюаризации оптоэлектронных устройств (более эффективное и компактное преобразование энергии возбуждения в энергию излучения).

**Особенности формирования гармоник при переизлучении на краю собственного поглощения**

В классической нелинейной оптике генерацию гармоник можно рассматривать как из классической электродинамической точки зрения [3], так и с квантовомеханической [2, 4]. В электродинамике генерация гармоник получается как решения соответствующих нелинейных уравнений для гармонического осциллятора. При этом квадратичной нелинейности соответствует генерация второй гармоники, кубической – третьей и т.д.

[3]. В квантовомеханической задаче процессы многофотонного поглощения описываются соответствующими приближениями теории возмущений [2,4]. При этом следует постулировать какую систему мы имеем (сколько уровней), а также природу мультиполя (диполь, магнитный диполь, электрический или магнитный квадруполь и т.п.).

Специфика «накачки» соответствующего уровня до величины минимальной энергии химической связи в кристалле (в прямозонных кристаллах это ширина запрещенной зоны) состоит в том, что нельзя разрывать все связи даже одного типа в кристалле, потому что при этом могут образовываться состояния, которые получили наименования оборванные связи [5]. С термодинамической точки зрения есть известный критерий Линдемана [2], согласно которому, для того чтобы кристалл плавился необходимо провести смещение его атомов на расстояния  $0,4 \div 0,5$  постоянной решетки, среднеквадратичное отклонение атома от положения равновесия  $\langle u^2 \rangle$  составляет  $0,20 \div 0,25$  от квадрата постоянной решетки  $a^2$  [6]. С помощью критерия Линдемана температура плавления кристалла может быть представлена как

$$T_{melt} = \frac{x}{9\hbar^2} M k_B T_D^2 a^2, \quad (1)$$

где  $M$  – масса атома кристалла,  $k_B$  – постоянная Больцмана,  $T_D$  – температура Дебая материала.

Если это смещение меньше, то мы можем получать также плавление, при импульсном характере взаимодействия. Для этого просто необходимо опустошить хотя бы одну из химических связей. Если энергии других химических связей близки по своему значению к энергии этой минимальной связи, то мы можем получить плавление. Для плавления мы должны получить «гидродинамизацию» материала, в противном случае плавления не будет. Если же, как в случае антимонида индия, энергии других связей намного больше энергии минимальной связи, то мы можем получить не расплав, а разогрев, вплоть до сублимации кристалла. Наведем простые оценки эффекта сублимации пластинок антимонида индия (ширина запрещенной зоны при комнатной температуре  $E_g = 0,18$  эВ, толщина пластинок  $d = 0,08$  см) после облучения лазером на  $\text{CO}_2$  в непрерывном режиме (энергия кванта облучения  $h\nu = 0,117$  эВ, плотность потока мощности  $w = 40$  Вт/см<sup>2</sup>). В данном случае первичное поглощение излучения происходит на свободных носителях, концентрация которых при комнатной температуре в антимониде индия составляет

$N_{fe} = 10^{16} \div 10^{17} \text{ см}^{-3}$ , линейный коэффициент поглощения излучения на этой длине волны  $10 \text{ см}^{-1}$ . Это позволяет оценить сечение однофотонного поглощения [7], в данном случае это  $10^{-16} \div 10^{-15} \text{ см}^2$ .

Вероятность многофотонного поглощения и сечения рассеяния мы прямо оценивать не будем, так как решать квантовомеханическую задачу для данного случая нет смысла. Вместо этого проведем энергетически кинетические оценки, где многофотонные процессы будут учитываться косвенно. Вначале оценим плотность потока квантов по формуле

$$\rho_{\text{quantum}} = w/(h\nu d). \quad (2)$$

Подставляя соответствующие данные имеем  $\rho_{\text{quantum}} = 2,84 \cdot 10^{22} \text{ квант/см}^3\text{с}$ . Если учесть, что в образце данной толщины поглощается около 30% падающего потока то  $\rho_{\text{quantum}}^{\text{effective}} = 8,52 \cdot 10^{21} \text{ квант/см}^3\text{с}$ . После этого оценим время «жизни» (практически время релаксации одного фотонного возбуждения) по формуле

$$\tau_{ph} = N_{fe} / \rho_{\text{quantum}}^{\text{effective}}. \quad (3)$$

Подставляя соответствующие значения, имеем  $1,17 \cdot (10^{-6} \div 10^{-5}) \text{ с}$ . С учетом того, что в результате облучения происходит на протяжении 5–6 с сублимация всего образца, оценим время, необходимое для сублимации, по следующей формуле:

$$\tau_s = \frac{N_A}{N_{fe}} \tau_{ph}, \quad (4)$$

где  $N_A = 4 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$  – плотность атомов и соответственно химических связей в InSb. Оценка дает значение  $\tau_s \cong 0,067 \div 6,7 \text{ с}$ . Как видим мы имеем вполне удовлетворительное совпадение с экспериментальными результатами. Однако, в процессе этого взаимодействия может происходить эффективное высвечивание энергии с  $h\nu = E_g$ , которое однако эффективно поглощается кристаллом, линейный коэффициент поглощения этого излучения составляет  $(1 \div 5)10^4 \text{ см}^{-1}$ . Поэтому оно в основном поглощается кристаллом, хотя часть его может и высвечиваться. Можно оценить мощность этого высвечивания. Пусть за время  $\tau_{ir} = 10^{-3} \text{ с}$  восстанавливается  $N_{rb} = (10^{18} \div 10^{20}) \text{ см}^{-3}$  чистых ковалентных связей, что соответствует излучению с  $h\nu = E_g$  в случае антимонида индия. Тогда мощность этого излучения определяется за формулой

$$w_{ir} = N_{rb} \cdot h\nu / \tau_{ir} . \quad (5)$$

Подставляя соответствующие значения имеем  $30,4 \div 3040 \text{ Вт/см}^3$ . Поверхностная плотность после умножения на толщину образца будет равна  $2,432 \div 243,2 \text{ Вт/см}^3$ . В пересчете на энергию это составляет  $(0,05 \div 5)\%$  от закачиваемой энергии. Наиболее реальный нижний предел этой оценки. При таком режиме облучения возникают и гармоники более высоких порядков, однако их относительный вклад в излучательные процессы еще меньше. Следует отметить, что визуальный разогрев полупроводника при цитируемом режиме облучения до визуально раскаленного яркокрасного цвета достигается на протяжении 2 – 3 с, после чего происходит сублимация. То есть эффект имеет свойство насыщения.

Можно оценить и энергетический предел разрушения кристаллической решетки, исходя из макроскопических соображений. Энергия сублимации одного атома в тетраэдрической решетке InSb порядка 10 эВ, суммарная объемная плотность энергии разрушения решетки в этом случае равна  $7,6 \cdot 10^3 \text{ Дж/см}^3$ , поверхностная  $6,1 \cdot 10^2 \text{ Дж/см}^3$ . Это превышает экспериментальное значение в 7,5 раз. Это обусловлено тем, что в реальном режиме облучения при разогреве образца энергия сублимации в 3 – 5 раз меньше чем при более низких температурах и, кроме того, при оценке режима облучения не был учтен факт поглощения отраженной от алюминиевой подложки, на которой размещался облучаемый образец, энергии излучения, это добавляет еще до 20% энергии к оценочному значению. Кроме того, коэффициент поглощения излучения в процессе облучения возрастает за счет увеличения концентрации фотоионизированных электронов и электронов, полученных в результате вторичных столкновений. Также с увеличением температуры уменьшается значение энергии сублимации соответствующего атома.

Аналогичные результаты были получены и при облучении InSb ( $E_g = 0,36 \text{ эВ}$ ) излучением того же лазера на  $\text{CO}_2$ . Там все энергетические характеристики были в 1,5 раза больше. И «затравкой» для необратимых процессов были трехфотонные процессы поглощения излучения.

Существенное различие рассматриваемого нами процесса от процесса разрушения оптических материалов под действием импульсного лазерного излучения [8] состоит в том, что облучение проводится в непрерывном режиме. И процесс накопления «многофотонных» нарушений накапливается более медленно.

Генерация гармоник, Манделъштам-Бриллюэновское и Рамановское рассеяния как эффекты нелинейной оптики, могут сопровождать процесс

разрушения, эти эффекты могут рассматриваться как излучательная релаксация в процессах релаксационной оптики [2]. Следует отметить, что процессы генерации гармоник второй для антимонида индия и третьей для арсенида индия при облучении лазером на  $\text{CO}_2$  более эффективно будут происходить при незначительном подогреве полупроводника или при этом параллельно будет происходить комбинационное рассеяние излучения из энергией кванта 0,054 эВ для антимонида индия. Для арсенида индия разница 0,009 эВ незначительна, она соответствует подогреву образца на 90–100 К, поэтому эффект комбинационного рассеяния излучения здесь должен быть менее значительным чем для InSb.

Для получения стабильных нелинейных эффектов мы должны проводить облучение со значительно меньшими плотностями энергии. К сожалению, экспериментально эти исследования для антимонида и арсенида индия не проводились.

### Заключение

Таким образом, построена классическая физико-химическая кинетическая модель, которая позволяет качественно объяснить экспериментальные результаты сублимации антимонида и арсенида индия излучением непрерывного лазера на  $\text{CO}_2$ .

Высказывается предположение, что затравочным механизмом повышения концентрации электронов в антимониде индия есть двухфотонное поглощение, а в арсениде индия трехфотонное поглощение. Энергетический расчет удовлетворительно согласуется с представленными модельными допущениями.

Высказываются соображения по проведению более тщательных экспериментов по многофотонному поглощению и генерации гармоник в антимониде и арсениде индия.

### Литература

1. Пантелл Р., Путхоф Х. Основы квантовой электроники. М.: Мир, 1972. 384 с.
2. Trokhimchuck P.P. Foundation of Relaxed Optics. Lutsk: Vezha, 2006. 294 p.
3. Ахманов С.В., Хохлов Р.В. Проблемы нелинейной оптики. М.: Наука, 1964. 296 с.
4. Boyd R.W. Nonlinear optics. New York a.o.: Random book, 2003. 578 p.
5. Wautelet M., Faily-Lavato M., Laude L.D. Dangling bonds in Si and Ge during laser irradiation //Physics C: Solid State Physics, Vol.13, 1980. P. 5505–5514.
6. Коротеев Н.И., Шумай И.Л. Физика мощного лазерного излучения. М.: Наука, 1991. 312 с.
7. Зельдович Я.Б. Высшая математика для начинающих и ее приложения к физике. М.: Наука, 1970. 560 с.
8. Маненков А.А., Прохоров А.М. Лазерное разрушение прозрачных твердых тел // Успехи физических наук, Т. 148, вып. 1. 1986. С. 179 – 211.