

К. ф.-м. н. А. С. ГАРКАВЕНКО

Украина, г. Львов, Центр физ.-мат. исследований "Кварк"
E-mail: las@gzt.lv.ukrtel.net

Дата поступления в редакцию

06.11 2000 г. — 31.01 2001 г.

Оппоненты д. т. н. В. А. МОКРИЦКИЙ,
к. х. н. А. Б. ГУЛЯЕНКО

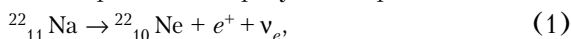
НЕМЕССБАУЭРОВСКИЙ ГАММА-ЛАЗЕР НА ОСНОВЕ ПРЯМОЗОННЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ СОЕДИНЕНИЙ

На примере прямозонного полупроводникового соединения CdS рассмотрены теория и технология создания немессбауэровского гамма-лазера.

Создание гамма-лазеров на ядерных переходах основывается на использовании эффекта Мессбауэра, позволяющего осуществить резонансные процессы испускания, поглощения и рассеяния гамма-квантов. Однако на пути создания таких лазеров лежит очень много трудностей, основной из которых является чрезвычайно сильное уширение резонансных линий мессбауэровских уровней, связанное со временем жизни. Преодоление этих трудностей лежит на пути искусственного сужения мессбауэровских линий, подбора необходимых для накачки ядерных переходов и т. д.

В настоящей работе на основе аналогии между экситонами Ванье — Мотта и атомами позитрония рассмотрена возможность создания немессбауэровского гамма-лазера.

Возьмем прямозонные полупроводниковые соединения CdS, GaAs, ZnS, ZnO *n*-типа проводимости с концентрацией электронов $N \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Если их легировать бета-плюс-радиоактивным изотопом натрия ($^{22}_{11}\text{Na}$) с концентрацией $N \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$, то он, вследствие малого атомного радиуса ($\sim 1,88 \text{ \AA}$), будет диффундировать по междоузлиям и испускать позитроны (e^+) в результате реакции



где ν_e — электронное нейтрино;

$^{22}_{10}\text{Ne}$ — устойчивый изотоп неона, который, вследствие своей инертности, является нейтральной примесью.

Как известно [1, с. 23], позитроны в конденсированной среде перед аннигиляцией с электронами тормозятся до энергии $\leq 10 \text{ эВ}$, т. е. достигают практически теплового равновесия со средой. При таком замедлении может образоваться позитроний — водородоподобный атом, состоящий из позитрона и электрона, движущихся вокруг общего центра тяжести [2, с. 82]. Позитроний может возникать в возбужденном и невозбужденном состояниях. Существует две его разновидности — орто- (при параллельной ориентации спинов) и пара- (при их антипараллельной ориентации). Ортопозитроний имеет время жизни

на верхнем возбужденном уровне $\tau \sim 1,4 \cdot 10^{-7} \text{ с}$ и аннигилирует по схеме $e^+ + e^- \rightarrow 3\gamma$ с излучением трех гамма-квантов, а парапозитроний имеет $\tau \sim 1,21 \cdot 10^{-10} \text{ с}$ и аннигилирует по схеме $e^+ + e^- \rightarrow 2\gamma$ с излучением двух гамма-квантов. Сечение образования позитрония σ_p в столкновениях свободных электронов и позитронов при малой относительной скорости v равно [3]

$$\sigma_p = 128 \pi r_0^2 v^2 / 3 \alpha^2 c^2 \cong 10^{-23} \text{ см}^2, \quad (2)$$

где r_0 — классический радиус электрона, $r_0 = e^2 / mc^2 = 2,818 \cdot 10^{-13} \text{ см}$;

e — заряд электрона;

m — его масса;

c — скорость света в вакууме;

α — постоянная тонкой структуры, $\alpha = 1/137 = 7,3 \cdot 10^{-3}$.

При $v = \alpha c = 2,2 \cdot 10^8 \text{ см} \cdot \text{с}^{-1}$, что соответствует кинетической энергии $\sim 13,5 \text{ эВ}$, сечение образования позитрония в 43 раза больше сечения аннигиляции σ_a [2, с. 82]:

$$\sigma_p / \sigma_a = 43 v^2 / \alpha^2 c^2. \quad (3)$$

Следовательно, можно ожидать, что в большинстве случаев перед аннигиляцией будет образовываться позитроний.

Рассмотрим образование позитрония в прямозонном полупроводниковом соединении, например CdS, с точки зрения физики полупроводников. В таком кристалле существуют свободные экситоны большого радиуса — экситоны Ванье — Мотта, т. е. связанные ослабленным в ϵ_0 раз кулоновским взаимодействием водородоподобные электронно-дырочные пары (ϵ_0 — статическая диэлектрическая проницаемость кристалла). Они описываются уравнением Ванье [4, с. 36]:

$$\begin{aligned} & (-\hbar^2 / 2\mu \nabla^2 - e^2 / \epsilon_0 r_{ex}) \Psi(r_{ex}) = \\ & = [E - E_g - \hbar^2 K^2 / 2(m_e + m_h)] \Psi(r_{ex}), \end{aligned} \quad (4)$$

где \hbar — постоянная Планка;

μ — приведенная масса электрона и дырки, образующих экситон, $\mu = m_e m_h / (m_e + m_h)$;

m_e, m_h — эффективные массы электрона и дырки, соответственно;

E_g — ширина запрещенной зоны полупроводника;

K — волновой вектор экситона с кинетической энергией $\hbar^2 K^2 / 2(m_e + m_h)$.

Из решения уравнения (4) можно получить собственные значения энергии экситона —

$$E = E_{ex} = E_g - e^4 \mu / \hbar^2 \epsilon_0^2; 1/n^2 \pm \hbar \omega_0 + \hbar^2 K^2 / 2(m_e + m_h), \quad (5)$$

энергию связи или ионизации экситона при $n = 1$ —

$$\Delta E_{ex} = \mu e^4 / \hbar^2 \epsilon_0^2 \quad (6)$$

и радиус экситона

$$r_{ex} = \hbar^2 \epsilon_0 / \mu e^2, \quad (7)$$

где n — главное квантовое число;
 $\hbar \omega_0$ — энергия фонона.

Проведем аналогию между экситоном Ванье — Мотта и позитронием. Будем считать позитрон в кристалле легкой дыркой с эффективной массой $m_h = m_e$. Тогда позитроний можно считать экситоном Ванье — Мотта нового типа (назовем его, например, позитэкс) с эффективной массой $\mu = m_e / 2$, энергией связи $\Delta E_{rex} = m_e e^4 / 2 \hbar^2 \epsilon_0$ и радиусом $r_{rex} = 2 \hbar^2 \epsilon_0 / m_e e^2$. Оптический спектр излучения, если позитэкс успевает высветиться до аннигиляции в результате переходов в низкие состояния возбуждения, представляет собой серии узких линий при энергиях

$$\hbar \omega = E_g - R_{rex} / n^2 \pm \hbar \omega_0, \quad (8)$$

где R_{rex} — позитэксный ридберг, который может быть получен из спектра атома водорода.

Серии линий укладываются в диапазон длин волн, занимающих ультрафиолетовую, видимую и ближнюю инфракрасную область спектра [2, с. 83]. Поскольку в данной работе нас интересует аннигиляция позитэксов с излучением гамма-квантов, детальным рассмотрением их оптических свойств мы заниматься не будем.

Как указывалось выше, концентрация электронов и позитронов в рассматриваемом нами кристалле CdS $N \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$, сечение образования позитэкса (с учетом эффективной массы в формуле (2)), определяемое кулоновским взаимодействием, $\sigma_{rex} = 2,6 \cdot 10^{-22} \text{ см}^2$ на порядок больше сечения образования позитрония σ_p . При таких концентрациях и сечениях электроны и позитроны, по аналогии с электронами и дырками (которые связываются в экситоны), объединяются в позитэксы и образуют позитэксный газ. Он будет состоять из позитэксов, находящихся в возбужденном и невозбужденном состояниях. Возбужденные позитэксы спонтанно аннигилируют. Большая часть позитэксного газа будет состоять из невозбужденных орто- и парапозитэксов, поскольку возникшие в кристалле в результате реакции (1) позитроны до их объединения с электронами находятся в термализованном состоянии. При этом число частиц в ортосостоянии значительно превышает их число в парасостоянии [5, с. 291].

Долю свободных электронов и позитронов, не связанных в свободные позитэксы, т. е. степень ионизации β позитэксного газа в образце при данной температуре, по аналогии с экситонами [6] можно оценить с помощью уравнения ионизационного равновесия

$$\beta^2 / 1 - \beta^2 = 1 / N (m_e kT / 4 \pi \hbar^2)^{3/2} \cdot \exp(-\Delta E_{rex} / kT), \quad (9)$$

где N — число электронно-позитронных пар в единице объема;

k — постоянная Больцмана;

T — температура.

При $T = 300 \text{ К}$ и $N \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$ степень ионизации позитэксного газа $\beta = 2\%$, т. е. в позитэксы связываются 98% электронно-позитронных пар. Однако уже при $T = 77 \text{ К}$ и $N \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$ $\beta = 1,5 \cdot 10^{-8} \%$, т. е. в позитэксы связываются практически все электронно-позитронные пары. При беспрепятственном движении свободных невозбужденных позитэксов по кристаллу их аннигиляция с излучением гамма-квантов маловероятна. В таком случае для экситонов время жизни определяется их рассеянием на полярных оптических фононах [4, с. 44]:

$$1/\tau = \omega_0 e^2 (1/\epsilon_\infty - 1/\epsilon_0) 1/2 (m_e - m_h / m_e + m_h)^2 (m_e + m_h / \hbar^2) \times r_{ex}^4 [2(m_e + m_h) \omega_0 / \hbar]^{3/2} [\exp(\hbar \omega_0 / kT) - 1]^{-1}, \quad (10)$$

где ω_0 — частота LO-фонона;

ϵ_∞ — высокочастотная диэлектрическая проницаемость.

Как видно из формулы (10), для позитэксов $1/\tau = 0$, а следовательно, время жизни $\tau \rightarrow \infty$. Отсюда следует, что монокристалл CdS, легированный позитронно-активной примесью при температуре ниже 77 К, перестанет излучать гамма-кванты. Можно предположить, что позитэкс будет аннигилировать с излучением гамма-квантов, когда при движении по кристаллу он столкнется с примесным центром, точечным дефектом или дислокацией. Этот процесс обусловит фоновое спонтанное гамма-излучение.

Если монокристалл CdS, содержащий невозбужденный позитэксный газ, возбудить электронным пучком так, как это делается в полупроводниковых лазерах с электронной накачкой [7, 8], то парапозитэксы будут аннигилировать с излучением двух когерентных гамма-квантов с энергиями $\hbar \omega$:

$$2\hbar \omega = E_0 + E_k - S\hbar \omega_0 - 2E_R, \quad (11)$$

где E_0 — полная внутренняя энергия позитэкса, $E_0 = 2m_e c^2$;

E_k — его кинетическая энергия;

$S\hbar \omega_0$ — избыток энергии, отдаваемой кристаллической решетке (испускание фононов);

$S = 1, 2, 3 \dots$;

E_R — энергия отдачи гамма-квантов.

Ортопозитэксы будут вносить меньший вклад в стимулированное гамма-излучение, т. к. они аннигилируют трехквантово и кванты имеют сплошной спектр с верхней границей 102 кэВ (с учетом эффективной массы $m_e = 0,2m$). Другими словами, при трехквантовой аннигиляции энергия кванта может принимать любое значение от нуля до максимально (~102 кэВ). Однако при электронной накачке за счет рассеяния ортопозитэксов на оптических фононах возможен переход большей их части в парапозитэксы, вносящие существенный вклад в стимулированное гамма-излучение. Их мы и будем рассматривать в дальнейшем.

В процессе излучательной аннигиляции позитэксов инверсия населенности возникает автоматически, т. к. они являются бозонами, и отсутствие запрета Паули для них делает возможным накопление неограниченного числа таких квазичастиц на верхнем возбужденном энергетическом уровне [9]. Рассмотрим это подробнее.

Время жизни возбужденных позитэксов на верхнем уровне до аннигиляции, как указывалось выше, будет $\tau \sim (10^{-7} - 10^{-10})$ с. Это означает, что при плотности числа позитэксов на верхнем уровне $\sim 10^{17}$ см⁻³ скорость возбуждения такой системы должна быть $g_{\text{рех}} \sim (10^{24} - 10^{27})$ см⁻³·с⁻¹. При электронной накачке полупроводников с энергией возбуждения E^0 , плотностью тока накачки j и глубиной проникновения электронов в кристалл d скорость генерации электронно-дырочных пар, возбуждающих позитэксы в единице объема, определяется соотношением [7, с. 210]

$$g = jE^0 / 3edE_g \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}, \quad (12)$$

которая при $E^0 = 50$ кэВ и $d \sim 5$ мкм будет иметь вид

$$g = 2 \cdot 10^{26} j / E_g \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}. \quad (13)$$

Поскольку скорость возбуждения позитэксов $g_{\text{рех}}$ пропорциональна g , то по порядку величины (особенно при больших E^0 и j) она согласуется с указанным выше диапазоном. Поэтому создание перенаселенности на верхнем возбужденном энергетическом уровне вполне реально. Возможно, что из-за энергии отдачи гамма-квантов кристалл будет разогреваться.

Оценки разогрева кристаллов приводятся при их диагностике методом радиоактивных изотопов (меченых атомов) и составляют при указанных концентрациях $\sim 10^\circ\text{C}$, а оценки разогрева кристаллов за счет накачки электронным пучком составляют $\sim 5^\circ\text{C}$, что при глубоком охлаждении исследуемых образцов (температура кипения жидкого азота, жидкого гелия) не оказывает существенного влияния на результаты эксперимента. Следовательно, никаких особых экспериментальных трудностей для накачки такой системы пучком быстрых электронов не должно существовать. В этих условиях может быть достигнут значительный коэффициент усиления.

Таким образом, при аннигиляции позитэксов с испусканием одного или нескольких фононов можно получить генерацию излучения [8, 10].

Генерация излучения получена в системе свободных экситонов. Экситонный механизм генерации наиболее четко проявляется в широкозонных полупроводниковых соединениях типа A_2B_6 на примере CdS и ZnSe [8, 10, 11]. В отличие от экситонов, при накачке (электронной, оптической и т. д.) позитэксы не образуются. Следует отметить, что в результате электронного возбуждения позитэксы могут неупруго сталкиваться друг с другом. При таком столкновении энергия и импульс одного позитэкса передается другому. Один из позитэксов излучательно аннигилирует, а другой либо диссоциирует на электрон и позитрон, а затем спонтанно аннигилирует, либо переходит на более высокий позитэксный уровень. Такое позитэкс-позитэксное взаимодействие может привести к смещению линии генерации в длинноволновую область. Как видно из формул (12) и (13), процесс стимулированного излучения позитэксов зависит от плотности тока j возбуждающего электронного пучка и будет происходить при $j < j_{\text{кр}}$ (критической).

При $j > j_{\text{кр}}$ позитэксы диссоциируют на свободные электроны и позитроны, которые затем спон-

танно аннигилируют, т. е. инверсная населенность не возникает. Это происходит потому, что существует критическая концентрация неравновесных носителей заряда $N_{\text{кр}}$, при которой экситонное, а соответственно и позитэксное, состояние вообще не может существовать из-за статического и динамического плазменного экранирования кулоновского взаимодействия электронов и дырок (позитронов). Это явление перехода от экситонного (позитэксного) газа к плазме электронов и дырок (позитронов) получило в литературе название экситонно-плазменного фазового перехода Мотта. Критерий Мотта $r/r_{\text{ex}} \leq (2,5 - 3,7)$, где $r = (3/4\pi N_{\text{кр}})^{1/3}$ — расстояние между частицами [12 - 15].

В CdS $N_{\text{кр}} \sim (2 \cdot 10^{17} - 2 \cdot 10^{18})$ см⁻³ [16]. Это соответствует критической плотности тока накачки $j_{\text{кр}} \sim (1 - 10)$ А/см². Отсюда следует, что полупроводниковые гамма-лазеры с накачкой электронным пучком ограничены по мощности когерентного гамма-излучения.

Мы рассмотрели электронную накачку, но может оказаться, что создание инверсной населенности в системе позитэксов будет более эффективным при использовании оптической накачки.

Как известно, условие инверсной заселенности является лишь необходимым, но не достаточным условием получения лазерного излучения (генерации). Достаточным является условие [8, 17], когда коэффициент усиления α_y больше коэффициента потерь $\alpha_{\text{п}}$:

$$\alpha_y \geq \alpha_{\text{п}} = \alpha_{\text{р}} + \alpha_{\text{г}}, \quad (14)$$

где $\alpha_{\text{р}}$ — потери излучения на его рассеяние и поглощение в активной среде;

$\alpha_{\text{г}}$ — дифракционные потери при выходе излучения из кристалла.

Равенство определяет порог генерации.

Для выполнения условия (14) необходимо использовать резонатор, создающий положительную обратную связь. В обычных оптических резонаторах обратная связь устанавливается из-за отражения генерируемого излучения от зеркал резонатора. Здесь целесообразно воспользоваться распределенной обратной связью (РОС). Для РОС-лазеров зеркала резонатора не требуются, т. к. их функции выполняет сама пространственная структура [8] решетки кристалла. При дифракции рентгеновских или гамма-лучей отражателями служат плоскости кристаллической решетки. Этот процесс описывается формулой Вульфа — Брегга

$$2d \sin \theta = l \lambda, \quad (15)$$

где d — расстояние между двумя соседними плоскостями;

θ — угол между падающим лучом и отражающей плоскостью;

l — порядок отражения, $l = 1, 2, 3 \dots$;

λ — длина волны излучения.

В нашем случае РОС-лазера для обеспечения брегговского отражения на 180° , необходимого для осуществления положительной обратной связи, сле-

дует принять $\theta = 90^\circ$. Тогда из формулы (15) получится длина волны $\lambda = 2d/l$. Соответственно длина волны нулевой продольной моды будет $\lambda = 2d$. Хотя решетка может отражать много различных продольных мод, соответствующих различным значениям l , внутри полосы усиления лазера будет лежать лишь одна или несколько мод.

При большом коэффициенте усиления значения частоты генерируемых мод задаются выражением [18, с. 267]

$$\omega_n = \omega - (n+1/2)(\pi c/L), \quad (16)$$

где ω — брегговская частота;
 $n = 0, 1, 2 \dots$;
 L — длина кристалла.

Расстояние между частотами мод определяется формулой

$$\omega_{n-1} - \omega_n \approx \pi c/L. \quad (17)$$

Использование РОС дает возможность сужения линии генерации и уменьшения угла расходимости излучения. Применение брегговской дифракции целесообразно еще и потому, что при ней происходит аномальное пропускание, т. е. гамма-кванты, распространяясь в кристалле под углом дифракции, почти не поглощаются ядрами атомов решетки кристалла [19, 20], а следовательно, уменьшается α_r и порог генерации. Поскольку выходные характеристики лазерного излучения существенно зависят от длины кристалла, то следует использовать кристаллы с L порядка 1 см и более, сканируя по ним электронный пучок.

Наряду с когерентным гамма-излучением, в качестве побочного эффекта может наблюдаться спонтанное гамма-, ультрафиолетовое, видимое и инфракрасное излучение позитэксов, а также спонтанное экситонное излучение в видимом диапазоне, которое можно использовать для юстировки лазера. Кроме того, имеет место мягкое тормозное рентгеновское излучение возбуждающих электронов. От всех этих видов побочных излучений можно, по мере надобности, избавиться с помощью современных технических средств, выделяя только пучок когерентного гамма-излучения.

Таким образом, приведенное выше исследование показывает принципиальную возможность создания немесбауэровского гамма-лазера нового типа на основе прямозонных полупроводниковых соединений. Предлагается использовать следующие технологические этапы получения такого лазера.

1. Легирование прямозонного полупроводникового соединения, например CdS, позитронно-активной примесью, например $^{22}_{11}\text{Na}$, до концентрации $\sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$. При больших концентрациях, что следует из критерия Мотта, электроны и позитроны не будут связываться в позитэксы.

2. Охлаждение исследуемого кристалла ниже температуры кипения жидкого азота, чтобы все электроны и позитроны связались в позитэксы.

3. Использование резонатора распределенной обратной связи для гамма-излучения.

4. Возбуждение системы позитэксов в кристалле CdS подобно полупроводниковым лазерам с электронной или оптической накачкой [7, 8].

ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ

1. Аннигиляция позитронов в твердых телах. — М.: ИЛ, 1960.
2. Власов Н. А. Антивещество. — М.: Атомиздат, 1966.
3. Иваненко Д., Соколов А. Позитроний // Докл. АН СССР. — 1947. — № 58. — С. 1329 — 1331.
4. Фэн Г. Фотон-электронное взаимодействие в кристаллах. — М.: Мир, 1969.
5. Шиллинг Г. Статистическая физика в примерах. — М.: Мир, 1976.
6. Великович А. Л., Гаркавенко А. С. Уширение экситонного уровня в кристалле CdS при электронном возбуждении // Физическая электроника. — 1990. — Вып. 40. — С. 93—97.
7. Богданкевич О. В., Дарзек С. А., Елисеев П. Г. Полупроводниковые лазеры. — М.: Наука, 1976.
8. Грибковский В. П. Полупроводниковые лазеры. — Минск: Тр. Белорусского ун-та, 1988. — С. 17—22.
9. Гросс Е. Ф. Исследования по оптике и спектроскопии кристаллов и жидкостей. — Л.: Наука, 1976.
10. Грибковский В. П. Теория поглощения и испускания света в полупроводниках. — Минск: Наука и техника, 1975.
11. Великович А. Л., Гаркавенко А. С., Голубев Г. П. и др. Модуляция излучения аргонового лазера за счет уширения экситонного уровня в кристалле CdS // Квантовая электроника. — 1985. — Т. 12, № 2. — С. 419—422.
12. Mott N. F. Metall insulator transition // Rev. of Modern Phys. — 1968. — Vol. 40, N 4. — P. 677—683.
13. Тягай В. А., Стерлигов В. А., Колбасов Г. Я. и др. Структура активного слоя и усиление света при однофотонной накачке в кристаллах CdS // Физика твердого тела. — 1979. — Т. 21, вып. 11. — С. 3326 — 3329.
14. Бродин М. С., Воловик Н. В., Резниченко В. Я., Страшников М. И. Особенности рекомбинационного излучения смешанных кристаллов $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$ при высоких уровнях возбуждения // Физика твердого тела. — 1981. — Т. 23, вып. 5 — С. 1318—1323.
15. Тимофеев В. Б. Излучательная рекомбинация в условиях экранирования кулоновского взаимодействия // Изв. АН СССР. Сер. Физ. — 1981. — Т. 43, № 6. — С. 1251 — 1255.
16. Стерлигов В. А., Колбасов Г. Я., Борцов В. Б. и др. Исследование оптических свойств активной поверхности CdS методом неравновесной спектроскопии отражения // Физика и техника полупроводников. — 1979. — Т. 13, вып. 6. — С. 1206—1208.
17. Ищенко Е. Ф., Климов Ю. М. Оптические квантовые генераторы. — М.: Сов. радио, 1968.
18. Хансперджер Р. Интегральная оптика. — М.: Мир, 1985.
19. Афанасьев А. М., Каган Ю. М. Письма в ЖЭТФ. — 1965. — Т. 102. — С. 130—131.
20. Оцуки Ё.-Х. Взаимодействие заряженных частиц с твердыми телами. — М.: Мир, 1985.