

Динамика генерации свободных носителей в кремнии под действием ультракоротких интенсивных терагерцевых импульсов

А. В. Овчинников и О. В. Чефонов

Объединенный институт высоких температур РАН, Ижорская ул., 13, стр.2, Москва 125412, Россия

E-mail: ovtch2006@yandex.ru

Статья поступила в редакцию 2 декабря 2022 г.

Аннотация. Представлены результаты экспериментов по генерации свободных носителей заряда в легированном образце кремния р-типа толщиной 235 мкм при воздействии импульсов терагерцевого излучения с максимальной напряженностью электрического поля 22 МВ/см. Исследования проводились методом “накачка–зондирование”, в котором терагерцевые импульсы использовались в качестве накачки, а пуг фемтосекундных лазерных импульсов с длиной волны излучения 1240 нм, следующих с частотой 73 МГц — в качестве зондирующего излучения. <https://doi.org/10.33849/2022212>

1. ВВЕДЕНИЕ

Для управления свойствами полупроводников, которые используются для создания сверхбыстрых электронных и оптоэлектронных устройств, большое значение имеют исследования динамики свободных носителей заряда в сильном электрическом поле электромагнитного излучения дальнего инфракрасного и терагерцевого (ТГц) диапазонов спектра. Разработка источников когерентного ТГц-излучения с высокой интенсивностью [1–4] и методов их обнаружения [5, 6] сделало возможным развитие этой области исследований.

В оптическом спектральном диапазоне генерация электронно-дырочных пар фемтосекундными импульсами отличается от генерации свободных носителей заряда в кремнии субпикосекундными ТГц-импульсами. Поскольку энергия фотонов в ТГц спектральном диапазоне на два порядка меньше, чем в оптическом, то основным механизмом создания свободных носителей является ударная ионизация, а не межзонное поглощение.

Экспериментальные исследования генерации свободных носителей представляют не только фундаментальный интерес, но и имеют большое практическое значение для разработки материалов солнечных элементов с высокой эффективностью [7], чувствительных детекторов фотонов [8], для понимания физики разрушения диэлектриков фемтосекундными лазерными импульсами [9] и генерации высших гармоник [10].

В работе [11] люминесцентное излучение экситонов в ближней инфракрасной области спектра использовалось для исследования механизма ударной ионизации в кристалле GaAs при воздействии ТГц-импульсов с напряженностью электрического поля до 1 МВ/см. Было показано, что регистрируемое излучение люминесценции обусловлено увеличением концентрации свободных носителей на три порядка за счет механизма ударной ионизации.

Исследования механизма ударной ионизации в кремнии проводились в работе [12] при напряженности электрического поля ТГц-импульсов до 3.6 МВ/см. Для усиления входного импульса с полем 0.5 МВ/см на поверхность экспериментального образца была нанесена антенная решетка из золота толщиной 200 нм. В работе исследовалась скорость ударной ионизации в зависимости от начальной концентрации свободных носителей по изменению коэффициента отражения на длине волны

излучения 800 нм фемтосекундного лазерного импульса. Показано, что начальная концентрация свободных носителей существенно влияет на скорость ионизации. Аналогичные исследования были проведены в работе [13] в полупроводнике InSb с шириной запрещенной зоны 170 мэВ и начальной концентрацией свободных носителей 10^{14} – 10^{15} см⁻³ при воздействии импульсов ТГц-излучения с напряженностью электрического поля до 100 кВ/см.

В работе [14] были выполнены экспериментальные исследования генерации свободных носителей в кремнии р-типа при воздействии импульсов ТГц-излучения с напряженностью электрического поля до 22 МВ/см. Выполненное численное моделирование на основе полученных экспериментальных данных показало, что в образце кремния вдоль направления распространения импульса ТГц-излучения возникает неоднородная концентрация электронов с максимальным значением около 10^{19} см⁻³ во входном слое кремния.

В данной работе представлены экспериментальные исследования по генерации свободных носителей в кремнии (р-типа с начальной концентрацией дырок $\sim 10^{15}$ см⁻³) при воздействии импульсов ТГц-излучения с напряженностью электрического поля 22 МВ/см, но в качестве зондирующего излучения использовался пуг фемтосекундных лазерных импульсов с длиной волны излучения 1240 нм, что позволило в одном импульсе ТГц-излучения получить данные об изменении пропускания образца и оценить среднее значение концентрации генерируемых свободных носителей.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ СХЕМА

Экспериментальная схема измерений представлена на рисунке 1. Генерация импульсов ТГц-излучения осуществлялась методом оптического выпрямления фемтосекундных лазерных импульсов в нелинейном органическом кристалле DSTMS (4-N,N-dimethylamino-4'-N'-methyl-stilbazolium 2,4,6-trimethylbenzenesulfonate) [15, 16]. В качестве накачки терагерцевого кристалла использовались импульсы фемтосекундной хром-форстеритовой лазерной системы с длиной волны излучения 1240 нм, длительностью импульса 80 фс и энергией в импульсе до 80 мДж [17].

Излучение хром-форстеритовой лазерной системы является оптимальным источником накачки для гене-

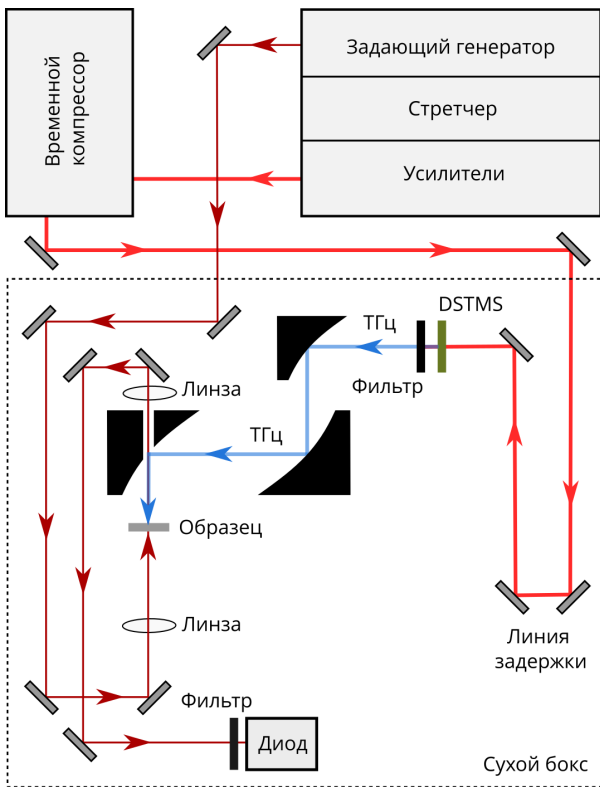


Рисунок 1. Экспериментальная схема измерений.

рации ТГц-излучения в кристалле DSTMS с эффективностью до 3% и гауссовым пространственным распределением [1, 18], что позволяет фокусировать ТГц-пучок в размер, близкий к дифракционному пределу [19, 20]. Для проведения экспериментов использовался ТГц-кристалл диаметром 8 мм и толщиной 440 ± 5 мкм. Эффективность преобразования составляла 1.6%, а энергия импульса — 120 мкДж. Для разделения излучения лазерной накачки от ТГц-излучения после кристалла ОН1 был установлен фильтр (LPF8.8-47, Tudeх), который ослаблял в 10^8 раз излучение с длиной волны меньше 34 мкм. Для достижения максимальной напряженности электрического поля пучок ТГц-излучения расширялся до ~ 50 мм с помощью телескопа, состоящего из двух внеосевых параболических зеркал с эффективным фокусным расстоянием 25.4 мм и 152.4 мм. Фокусировка ТГц-излучения осуществлялась с помощью внеосевого параболического зеркала с эффективным фокусным расстоянием 50.8 мм и диаметром 50.8 мм. Благодаря полному заполнению апертуры фокусирующей параболы диаметр ТГц-пучка в фокальной плоскости составлял 170 ± 10 мкм по уровню $1/e$, что близко к дифракционному пределу 154 мкм (для центральной длины волны 170 мкм). Пространственное распределение ТГц-пучка измерялось с помощью ТГц-камеры (RIGI Swiss Terahertz). Часть экспериментальной схемы, которая связана с генерацией ТГц-излучения и изучением взаимодействия ТГц-излучения с кремнием, была размещена в боксе с осушенным воздухом (относительная влажность была менее 5%). В качестве зондирующего излучения использовался цуг фемтосекундных импульсов с частотой следования 73 МГц из задающего генератора лазерной системы (около 4% от общей мощности задающего генератора).

Временная форма ТГц-импульса измерялась методом электрооптического детектирования в кристалле фосфида галлия GaP с кристаллографической плоскостью (110) толщиной 200 мкм. В качестве зондирующего излучения использовался фемтосекундный оптический импульс с длиной волны излучения 1240 нм. Измеренная временная форма ТГц-импульса и его спектр представлены на рисунках 2 и 3. Максимальное значение напряженности электрического поля достигало 22 МВ/см.

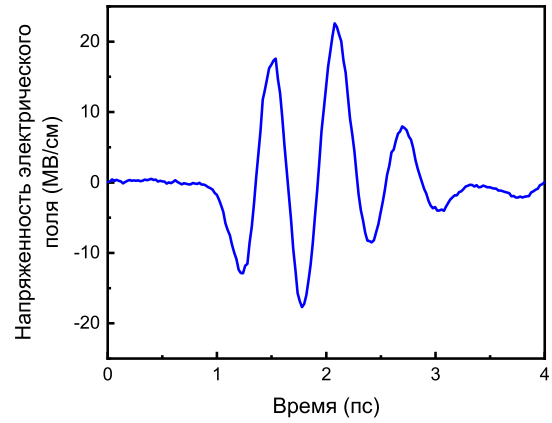


Рисунок 2. Временная форма ТГц-импульса.

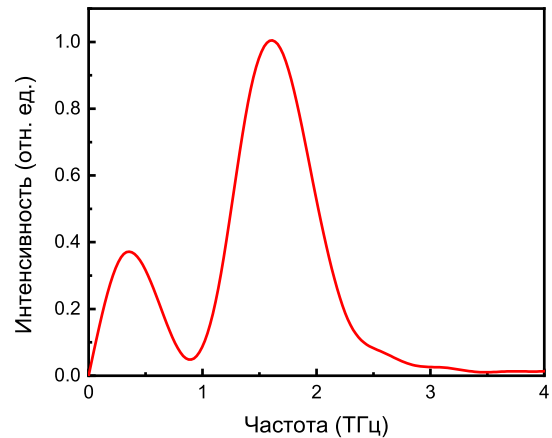


Рисунок 3. Спектр ТГц-импульса.

В эксперименте для исследования процессов, происходящих в кремнии при воздействии ТГц-импульсов, измерялось пропускание излучение зондирующего импульса, распространяющегося во встречном направлении относительно ТГц-импульса. Излучение фокусировалось в центральную область ТГц-пучка в пятно диаметром 20 мкм (по уровню $1/e$) с помощью линзы с фокусным расстоянием 100 мм. Регистрация интенсивности излучения зондирующего импульса, прошедшего через экспериментальный образец, осуществлялась InGaAs фотодиодом PD (DET01CFC/M, Thorlabs) с максимальной чувствительностью в диапазоне 800–1700 нм и постоянной времени ~ 1 нс. Интенсивность пробного излучения составляла $\sim 10^9$ Вт/см², что было существенно ниже порога генерации свободных носителей за счет двухфотонного поглощения (энергия кванта излучения зондирующего импульса 0.98 эВ меньше ширины запрещенной зоны кремния).

В качестве экспериментального образца в работе использовалась полированная пластина кристаллического кремния, легированного атомами бора (р-тип), с ориентацией (100) и толщиной 235 мкм. Концентрация легирующей примеси составляла $1.6 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$ по измеренному удельному сопротивлению (12.2 Ом см) четырехзондовым методом. Образец был установлен на моторизованном трансляторе для оптимального расположения в фокальной плоскости фокусирующего параболического зеркала.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рисунке 4 представлены экспериментальные данные по изменению пропускания кремния при воздействии импульсов ТГц-излучения с напряженностью электрического поля 22 МВ/см. Изменение пропускания образца кремния связано с поглощением зондирующего излучения свободными носителями, которые были созданы при воздействии импульса ТГц-излучения. Поэтому изменение пропускания будет свидетельствовать и об изменении концентрации свободных носителей, в частности, их релаксации. Как видно из рисунка, при воздействии ТГц-импульса происходит резкое (в течении действия ТГц-импульса) уменьшение пропускания кремния на длине волны 1240 нм, что свидетельствует о генерации свободных носителей, а затем медленное восстановление пропускания за счет рекомбинации свободных носителей.

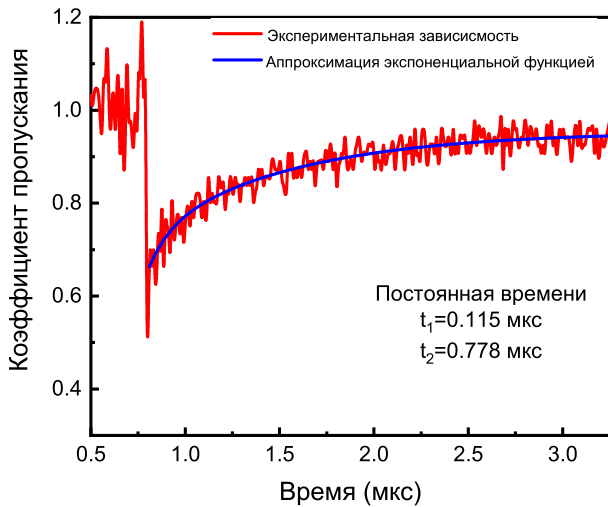


Рисунок 4. Зависимость коэффициента пропускания кремния на длине волны зондирующего импульса 1240 нм после воздействия импульса ТГц-излучения с напряженностью электрического поля 22 МВ/см. Значение коэффициента пропускания 1 соответствует начальному (невозбужденному) коэффициенту пропусканию кремния.

Расчеты, выполненные в работе [14], показывают, что концентрация генерируемых свободных носителей под действием ТГц-импульса с напряженностью 22 МВ/см распределена неоднородно в кремнии вдоль направления распространения ТГц-излучения. Максимальная концентрация свободных носителей достигается во входном слое (для ТГц-импульса) и минимальная — при выходе ТГц-импульса из образца. Полученные экспериментальные данные с помощью цуга фем-

тосекундных импульсов не позволяют получить информацию о пространственном распределении концентрации свободных носителей. Однако, может быть сделана оценка средней концентрации по толщине образца свободных носителей, генерируемых вдоль направления распространения ТГц-импульса, используя временную зависимость изменения пропускания кремниевой пластины (рисунок 4).

Экспериментальная кривая (красная линия) может быть аппроксимирована нелинейной функцией, состоящей из двух экспоненциальных зависимостей ($y = y_0 + A_1 \exp(-(x - x_0)/t_1) + A_2 \exp(-(x - x_0)/t_2)$) с постоянными времени 0.115 мкс и 0.778 мкс (синяя кривая, $y_0 = 1$, $x_0 = 0.82$, $A_1 = -0.074$, $A_2 = -0.213$).

Основной процесс рекомбинации свободных носителей в кремнии происходит за счет процесса Оже-рекомбинации, при котором время релаксации связано с концентрацией носителей следующим выражением:

$$\tau^{-1} = Cn^2, \quad (1)$$

где τ — время релаксации свободных носителей, C — коэффициент Оже-рекомбинации ($C = 2.8 \times 10^{-31} \text{ см}^6/\text{с}$ [21]), n — концентрация свободных носителей. На начальном участке пропускание изменяется с постоянной времени 115 нс, что соответствует концентрации носителей $5 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$.

Также оценка среднего значения концентрации генерируемых свободных носителей в кремнии была сделана на основе экспериментальных данных о начальном максимальном изменении коэффициента пропускания, которое составляло ~ 0.35 . При толщине пластины 235 мкм и коэффициенте пропускания $T = 0.65$ коэффициент поглощения, в соответствии с законом Бугера ($\alpha = -\ln T/l$, где l — толщина пластины кремния), составляет величину $\alpha = 18 \text{ см}^{-1}$. Показатель поглощения связан с концентрацией свободных носителей моделью Друде [22], и определяется следующим выражением:

$$\alpha_{\text{Drude}} = \frac{e^2 n_c \lambda^2}{4\pi^2 c^3 \epsilon n_0 m_e^* \tau_e}, \quad (2)$$

где e — заряд электрона, c — скорость света, ϵ_0 — диэлектрическая постоянная, n_0 — показатель преломления материала, λ — длина волны излучения, n_c — концентрация свободных носителей, m_e^* — эффективная масса электрона ($m_e^* = 0.15 m_e$), τ_e — время между столкновениями. Концентрация свободных носителей при показателе поглощения $\alpha = 18 \text{ см}^{-1}$ составила величину $4 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$, что хорошо коррелирует с определением концентрации по времени рекомбинации. При оценке концентрации в выражении (2) время между столкновениями было взято 10^{-14} с на основе квантово-механических расчетов скорости столкновений $v(\epsilon)$ как функции энергии электронов ϵ и импульса, представленных в [23, 24].

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены экспериментальные исследования взаимодействия импульсов ТГц-излучения с напряженностью электрического поля 22 МВ/см на кремний р-типа.

Разработанная экспериментальная методика с применением в качестве зондирующего излучения задающего генератора с длиной волны излучения 1240 нм, фемтосекундные импульсы которого следуют с частотой 73 МГц, позволила за один импульс нагревающего ТГц-импульса зарегистрировать релаксацию свободных носителей на временном масштабе несколько микросекунд. По полученным экспериментальным данным были сделаны оценки среднего значения по толщине образца концентрации генерируемых свободных носителей вдоль направления распространения ТГц-импульса, которые показали, что при напряженности электрического поля ТГц-импульса 22 МВ/см средняя концентрация достигает величины $(4-5) \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$, что хорошо коррелирует со средним значением концентрации по толщине образца $5.5 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$, оценки которого были получены по данным, представленным на рисунке 5 в работе [14].

БЛАГОДАРНОСТИ

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ и Госкорпорации “Росатом” в рамках научного проекта № 20-21-00043.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Vicario C, Ovchinnikov A, Ashitkov S, Agranat M, Fortov V and Hauri C 2014 *Opt. Lett.* **39** 6632–35
2. Shalaby M and Hauri C P 2015 *Nat. Commun.* **6** 5976
3. Koulouklidis A D, Gollner C, Shumakova V, Fedorov V Y, Pugžlys A, Baltuška A and Tzortzakis S 2020 *Nat. Commun.* **11** 1–8
4. Fülöp J A, Ollmann Z, Lombosi C, Skrobel C, Klingebiel S, Pálfalvi L, Krausz F, Karsch S and Hebling J 2014 *Opt. Express* **22** 20155–163
5. Shen Y, Watanabe T, Arena D A, Kao C C, Murphy J B, Tsang T Y, Wang X J and Carr G L 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 043901
6. Kim K Y, Glowina J H, Taylor A J and Rodriguez G 2007 *Opt. Express* **15** 4577
7. Pijpers J J H, Ulbricht R, Tielrooij K J, Osherov A, Golan Y, Delerue C, Allan G and Bonn M 2009 *Nat. Phys.* **5** 811–14
8. Hadfield R H 2009 *Nat. Photonics* **3** 696–705
9. Lenzner M, Krüger J, Sartania S, Cheng Z, Spielmann C, Mourou G and Kautek F 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4076–79
10. Ghimire S, Dichiara A D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L F and Reis D A 2011 *Nat. Phys.* **7** 138–41
11. Hirori H, Shinokita K, Shirai M, Tani S, Kadoya Y and Tanaka K 2011 *Nat. Commun.* **2** 8–13
12. Tarekgegne A T, Hirori H, Tanaka K, Iwaszczuk K and Jepsen P U 2017 *New J. Phys.* **19** 123018
13. Hoffmann M C, Hebling J, Hwang H Y, Yeh K L and Nelson K A 2009 *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* **79** 3–6
14. Ovchinnikov A V, Chefonov O V, Agranat M B, Kudryavtsev A V, Mishina E D and Yurkevich A A 2021 *Opt. Express* **29** 26093–102
15. Yang Z, Mutter L, Stillhart M, Ruiz B, Aravazhi S, Jazbinsek M, Schneider A, Gramlich V and Günter P 2007 *Advanced Functional Materials* **17** 2018–23
16. Stillhart M, Schneider A and Günter P 2008 *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 1914
17. Agranat M, Ashitkov S, Ivanov A, Konyashchenko A, Ovchinnikov A and Fortov V 2004 *Quantum Electron.* **34** 506–08
18. Vicario C, Jazbinsek M, Ovchinnikov A, Chefonov O, Ashitkov S, Agranat M and Hauri C 2015 *Opt. Express* **23** 4573–80
19. Chefonov O V, Ovchinnikov A V, Agranat M B and Stepanov A N 2019 *Opt. Lett.* **44** 4099–102
20. Chefonov O V, Ovchinnikov A V, Hauri C P and Agranat M B 2019 *Opt. Express* **27** 27273
21. Dziewior J and Schmid W 1977 *Appl. Phys. Lett.* **31** 346–48
22. Ashcroft N and Mermin N 1976 *Solid State Physics* (Saunders College Publishing)
23. Meng F, Thomson M D, Sernelius B E, Jörgner M and Roskos H G 2015 *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* **91** 1–8
24. Kunikiyo T, Takenaka M, Kamakura Y, Yamaji M, Mizuno H, Morifuji M, Taniguchi K and Hamaguchi C 1994 *J. Appl. Phys. (Melville, NY, U. S.)* **75** 297–312