

УДК 537.311.33+621.315.592

РОЛЬ ЗАПОЛНЕНИЯ ЗОНЫ НЕРАВНОВЕСНЫМИ НОСИТЕЛЯМИ ЗАРЯДА В ЭКСПЕРИМЕНТАХ ПО САМОДИФРАКЦИИ В КРЕМНИИ

В. Д. Асимова, Р. Г. Запорожченко, В. А. Запорожченко, И. В. Пилипович

Приведены результаты измерения эффективности высших порядков светоиндуцированной дифракции при сильном возбуждении кремния ультракороткими импульсами света и представлена теоретическая модель, учитывающая убывание межзонного поглощения по мере заполнения зоны проводимости фотовозбужденными электронами. Показано, что наибольший вклад в ангармонизм светоиндуцированной решетки неравновесных носителей заряда обусловлен эффектом заполнения зоны при непрямых переходах в кремнии.

Светоиндуцированная дифракция света (СИД) исследуется достаточно давно и с успехом используется, в частности, для определения параметров полупроводников [1-7]. При этом, как правило, наблюдения проводятся по эффективности первого порядка СИД, а получение информации о светоиндуцированных изменениях показателя преломления и коэффициента поглощения полупроводника основывается на сопоставлении результатов эксперимента с расчетом СИД в рамках приближения Рамана—Ната. Изучение эффективности различных порядков дифракции позволяет наблюдать отклонения от простейшей модели Рамана—Ната и тем самым получать информацию об ангармонизме светоиндуцированной решетки показателя преломления и коэффициента поглощения вещества. Такой ангармонизм в полупроводниках может быть обусловлен нелинейностями процессов генерации и рекомбинации неравновесных носителей заряда (ННЗ) [4, 6, 8], нелинейной зависимостью оптических свойств среды от их концентрации [5, 8, 9] и участием в образовании светоиндуцированной решетки ННЗ самих дифрагированных лучков [10]. При слабом ангармонизме (невысоких уровнях возбуждения) полупроводника и малых толщинах образца эффективность дифракции высших порядков удастся приближенно описывать в рамках теории Рамана—Ната, т. е. как дифракцию на совокупности светоиндуцированных решеток с кратными периодами [8, 6, 11, 12]. Случай, рассмотренный в [10], соответствует нарушению условий применимости этого приближения, так как образец не может считаться тонким. Следует, однако, отметить, что в цитированных выше работах основными механизмами процесса генерации ННЗ, приводящими к ангармонизму светоиндуцированной решетки, считается двух- или многофотонное межзонное поглощение падающего на среду интерференционного светового поля или искажение профиля штриха решетки с глубиной проникновения в образец под влиянием внутризонного поглощения [5].

В настоящей работе приведены результаты измерений высших порядков СИД при высоких уровнях возбуждения кремния ультракороткими световыми импульсами, свидетельствующие о сильном ангармонизме светоиндуцированной решетки ННЗ, и рассмотрен вклад в ангармонизм эффекта насыщения межзонного поглощения, проанализированного для кремния в [8].

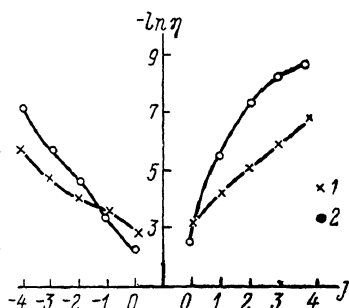
В эксперименте излучение импульсно-периодического ИАГ: Nd лазера с активной синхронизацией мод разделялось на два пучка, которые после оптических линий задержки фокусировались линзой с фокусным расстоянием 50 см в образец кремния толщиной $d=0.4$ мм. Пучг излучения лазера содержал по полувысоте 8 УКИ длительностью 200 пс. Соотношение интенсивностей пучков было 1 : 3.5.

На рис. 1 приведены экспериментально полученные зависимости эффективности дифракции η_j (отношение энергии в дифрагированном пучке к энергии более интенсивного пучка на входе в среду) от номера j порядка дифракции. Сопоставление этих результатов с расчетами в рамках общепринятых приближений [3, 5-7, 11] выявило существенные их расхождения. Так, для $j=4$ экспериментальные данные превышают расчетные в 10^4 раз. Поскольку, как показано в [12], СИД первого порядка на высших гармониках светоиндуцированной решетки вносит в эффективность дифракции существенно больший вклад, чем ступенчатый процесс на решетке первого порядка, то полученный результат свидетельствует о сильном ангармонизме решетки и, следовательно, о заметной нелинейности процессов генерации и релаксации ННЗ в кристаллическом кремнии.

Основной механизм нелинейности процесса генерации ННЗ в кремнии при одно-

Рис. 1. Эффективность различных порядков дифракции.

1 — эксперимент, 2 — теория.



фотонном поглощении связан, по-видимому, с убыванием межзонного поглощения по мере заполнения зоны проводимости фотовозбужденными электронами [8]. Для непрямых переходов, когда импульс электрона не сохраняется, следуя процедуре, аналогичной [8], вероятность перехода в единицу времени можно рассчитать, воспользовавшись известным выражением (см., например, [13])

$$W(t) = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{k_h} \sum_{k_e} |H_{vc}|^2 g_v(k_h) g_c(k_e) [f_v(\epsilon_v) - f_c(\epsilon_c)] \delta[\hbar\omega - E_g - \epsilon_c - \epsilon_v - \epsilon_{ph}], \quad (1)$$

где H_{vc} — матричный элемент гамильтониана взаимодействия вещества с полем излучения при участии фонона; ω — частота действующего поля; E_g — ширина запрещенной зоны; g_c, g_v — плотности состояний; k_e, k_h — волновые векторы электронов и дырок; $f_v(\epsilon_v), f_c(\epsilon_c)$ — функции распределения электронов по состояниям в зоне проводимости и в валентной зоне. В приближении изотропных параболических зон $\epsilon_c = \hbar^2 k_e^2 / 2m_e$ и $\epsilon_v = \hbar^2 k_h^2 / 2m_h$, где m_e, m_h — эффективные массы электронов и дырок.

Считая, что длительности световых импульсов $\tau_u = 2 \cdot 10^{-10}$ с существенно больше времени внутризонной релаксации, и пренебрегая тепловыми эффектами, электроны и дырки в зонах полагаем вырожденными ($f_v(\epsilon_v) = 1$ и $f_c(\epsilon_c) = 0$) и переходим к интегрированию по незаполненным состояниям в зоне проводимости. Пренебрегая энергией фонона ϵ_{ph} в аргументе δ -функции, получим

$$W(\omega) = \frac{2\pi}{\hbar} |H_{vc}|^2 \frac{V^2}{2\pi^4} \frac{(m_e m_h)^{3/2}}{\hbar^6} \int_{\epsilon_{\min}}^{\epsilon_{\max}} \sqrt{\epsilon_c (\hbar\omega - E_g - \epsilon_c)} d\epsilon_c. \quad (2)$$

Интеграл (2) вычисляется точно

$$W(\omega) = \frac{2\pi}{\hbar} |H_{vc}|^2 \frac{V^2}{2\pi^4} \frac{(m_e m_h)^{3/2}}{\hbar^6} \left\{ -\frac{\epsilon_c}{4} (\hbar\omega - E_g - \epsilon_c)^{3/2} + \right.$$

$$+ \frac{\hbar\omega - E_g}{8} \left[\sqrt{\varepsilon_c (\hbar\omega - E_g - \varepsilon_c)} + (\hbar\omega - E_g) \arcsin \sqrt{\frac{\varepsilon_c}{\hbar\omega - E_g}} \right] \Big|_{\varepsilon_{\min}}^{\varepsilon_{\max}}. \quad (3)$$

Пределы интегрирования связаны при этом с концентрацией фотозвужденных электронов n_e выражениями

$$\varepsilon_{\min} = \frac{\hbar^2}{2m_e} \left(\frac{3\pi^2 n_e}{V} \right)^{2/3}, \quad \varepsilon_{\max} = \hbar\omega - E_g - \frac{\hbar^2}{2m_h} \left(\frac{3\pi^2 n_e}{V} \right)^{2/3}. \quad (4)$$

При $n_e=0$ формула (3) переходит в известное выражение для вероятности линейного межзонного поглощения [13]. Вводя нормировку на полное число состояний в зоне проводимости, участвующих в межзонном поглощении в отсутствие ННЗ

$$N_0 = \left(\frac{2m_e}{\hbar^2} \right)^{3/2} (\hbar\omega - E_g)^{3/2} \frac{1}{3\pi^2}, \quad (5)$$

из (3) и (4) с учетом равенства в кремнии эффективных масс дырок и электронов [14] выражение для динамического коэффициента поглощения при произвольном $y = n_e/N_0$ можно записать в виде

$$\alpha(y) = \frac{4}{\pi} \alpha_0 \left\{ y^{1/2} (1 - y^{2/3})^{3/2} - y \sqrt{1 - y^{2/3}} + \frac{1}{2} \arcsin(1 - 2y^{2/3}) \right\}, \quad (6)$$

где α_0 — линейный коэффициент поглощения кремния, на длине волны 1.064 мкм равный 10 см^{-1} .

Поскольку в кремнии диффузия ННЗ, а также их линейная и квадратичная рекомбинация происходят с характерными временами [6], существенно превышающими длительность использованных в эксперименте импульсов, то процесс генерации носителей с учетом Оже-рекомбинации можно описать уравнением

$$\frac{dy}{dt} = -\gamma_0 y^3 + \frac{\alpha(y)}{\hbar\omega} \mathcal{J}(x, z, t), \quad (7)$$

где γ_0 — константа Оже-рекомбинации, $\mathcal{J}(x, z, t)$ — интенсивность светового поля в исследуемом образце. Используя (6), из уравнения (7) можно найти концентрации ННЗ при разных заданных $\mathcal{J}(x, z, t)$. Такие зависимости для гауссова импульса $\mathcal{J}(t) = \mathcal{J}_0 \exp\{-4 \ln 2 (t/\tau_u)^2\}$ (показан штрихом) при $\tau_u = 2 \cdot 10^{-10}$ с и двух значениях \mathcal{J}_0 приведены на рис. 2, а. Из этого рисунка видно, что при $\mathcal{J}_0 = 3.4 \text{ ГВт/см}^2$ концентрация ННЗ достигает насыщения вблизи максимума оптического импульса (кривая 1), т. е. к этому моменту опустошены состояния валентной зоны и заполнены все состояния зоны проводимости, связанные одноквантовым оптическим переходом. При малых интенсивностях (кривая 2) процесс накопления ННЗ происходит в течение всего импульса возбуждения. Штриховой линией у кривой 1 показано уменьшение концентрации ННЗ без учета Оже-рекомбинации, совершенно незначительное при меньших интенсивностях возбуждения.

При описании самодифракции излучения в (7) необходимо взять $\mathcal{J}(x, z, t)$ для поля интерферирующих пучков, направленных под углом θ . В случае двух пучков $\mathcal{J}(x, z, t) = \mathcal{J}(t) \cos[(n_0 \omega/c) x \sin \theta/2]$. Разлагая y в ряд Фурье по пространственным гармоникам

$$y(x, t) = \sum_{j=0}^m b_j(t) \cos\left(2j \frac{n_0 \omega}{c} x \sin \frac{\theta}{2}\right), \quad (8)$$

из (7) нетрудно получить систему уравнений для определения $b_j(t)$, а следовательно, и рассчитать светоиндуцированную решетку ННЗ.

При малых входных интенсивностях (кривая 2 на рис. 2, а) b_j для $j \geq 2$ пренебрежимо малы, т. е. ангармонизм решетки ННЗ практически ненаблюдаем (рис. 2, б). Для случая, соответствующего кривой 1 на

рис. 2, а, решетку ННЗ можно считать гармонической лишь на переднем фронте импульса возбуждения (рис. 2, в). К центру импульса уже три пространственные гармоники имеют сравнимые значения, а на заднем фронте появляется и четвертая гармоника.

Расчет эффективности дифракции в этих условиях целесообразно проводить, учитывая взаимодействие между собой различных порядков дифракции. Решение уравнений Максвелла будем искать в виде суперпозиции полей различных порядков дифракции, полагая выполненным приближение теории Рамана—Ната ($n_0 \omega/c$) $[1 - \cos((2m+1)/2)\theta] d < \pi$, соответствующее ограничению на угол между пучками в среде $\theta < \sqrt{\lambda/n_0 d}/m$. В нашем эксперименте это условие выполнялось, поскольку угол θ в среде составлял $5.7 \cdot 10^{-3}$,

$$E(x, z, t) = \sum_{p=-0}^m E_{+p}(z, \tau) \exp \left\{ -i\omega \left[\tau - \left(p + \frac{1}{2} \right) \frac{n_0 \theta x}{2c} \right] \right\} + \sum_{p=-0}^m E_{-p}(z, \tau) \exp \left\{ -i\omega \left[\tau + \left(p + \frac{1}{2} \right) \frac{n_0 \theta x}{2c} \right] \right\}, \quad (9)$$

где $\tau = t - n_0 z/c$. Пользуясь стандартной процедурой вывода уравнений для медленно меняющихся амплитуд $E_p(z, t)$ [15], в рамках модели Друде изменений показателя преломления и коэффициента внутризонного поглощения полупроводника [3, 4, 6, 7]

$$\Delta n = n_{eh} n_e, \quad \Delta \alpha = \sigma_{eh} n_e \quad (10)$$

для коэффициентов разложения получим систему уравнений

$$\frac{\partial E_p(z, \tau)}{\partial z} = \frac{i\omega N_0}{2c} \left(n_{eh} + i \frac{1}{4\pi} \sigma_{eh} \right) \sum_{j=0}^m b_j(\tau) (E_{p-j} + E_{p+j}). \quad (11)$$

Для упрощения расчетов в (11) не учтено изменение коэффициента межзонного поглощения (6) ННЗ, что не может привести к заметной погрешности результата как из-за существенно меньшего вклада в дифракцию амплитудной решетки по сравнению с фазовой, так и благодаря большому сечению внутризонного поглощения в кремнии по сравнению с межзонным. В [1] приведено значение $\sigma_{eh} = 4.9 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$, что хорошо согласуется с нашими измерениями зависимости пропускания образца от интенсивности падающего излучения. При малых интенсивностях пропускание составляло 28 %, что при $n_0 = 3.47$ соответствовало линейному коэффициенту поглощения $\alpha_0 \approx 9.1 \text{ см}^{-1}$. С ростом интенсивности до 3.4 ГВТ/см^2 пропускание уменьшалось до 16 %, т. е. коэффициент поглощения возрастал до 23 см^{-1} . В предположении насыщения межзонного поглощения и с учетом рассчитанных выше концентраций ННЗ оценка величины σ_{eh} составляет $\sim (5-6) \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$, что хорошо согласуется с данными [1].

Система уравнений (11) решалась численно с $b_j(t)$, рассчитанными выше (рис. 2, в). Результаты расчета для порядков одного знака (рис. 3) иллюстрируют перераспределение интенсивности между различными порядками дифракции во времени. При этом видно, что эффективность первого порядка дифракции начинает уменьшаться до достижения максимума входного импульса за счет перекачки энергии в высшие порядки.

Для сравнения с экспериментальными данными вычислялась энергия, дифрагированная в каждый порядок дифракции

$$W_p = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} |E_p(d, t)|^2 dt. \quad (12)$$

Результаты, приведенные на рис. 1, вполне удовлетворительно согласуются с представленными там же экспериментальными данными. Сравнение масштаба ангармонизма, обусловленного эффектом насыщения межзонного поглощения, с возникающими в результате многофотонного поглощения, нелинейной рекомбинации и искажениями профиля штриха под влиянием наведенного внутризонного поглощения удобно проводить по коэффициентам Фурье-разложения пространственной решетки ННЗ, приведенным для нашего случая на рис. 2, в. Видно, что $b_1 : b_2 : b_3 : b_4 = 1 : 0.84 : 0.54 : 0.23$.

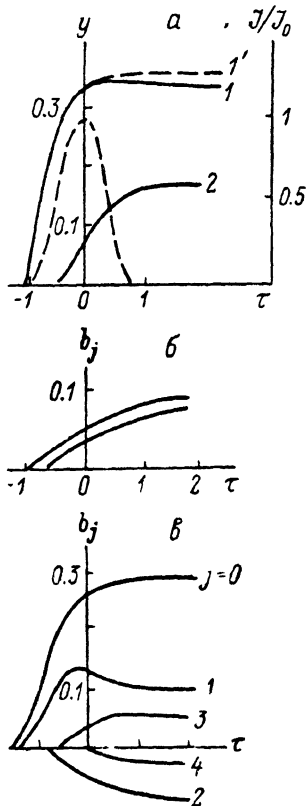


Рис. 2. Временные зависимости концентрации ННЗ y (а) для входных интенсивностей $J_0 \approx 3.4$ ГВт/см² (1, 1') и 17 МВт/см² (2), коэффициенты Фурье-разложения b_j светиндуцированной решетки ННЗ для 17 Вт/см² (б) и 3.4 ГВт/см² (в).

Время нормировано на τ_{II} .

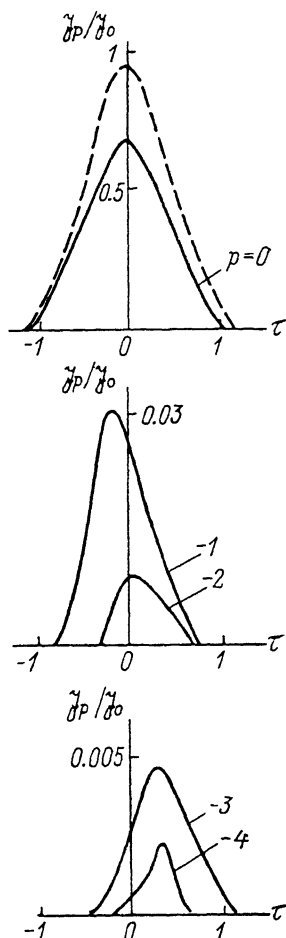


Рис. 3. Временные зависимости эффективности дифракции различных порядков.

Штриховая кривая — входной импульс J/J_0

Для многофотонных механизмов генерации носителей и нелинейных механизмов их рекомбинации оценки коэффициентов разложения решетки, приведенные в [11], показывают существенно более быстрое их убывание с номером порядка. Искажение профиля штриха с глубиной за счет поглощения на свободных носителях, рассмотренное в [5], также дает меньший вклад в ангармонизм. В этом случае в пределе больших интенсивностей возбуждения коэффициенты Фурье-разложения b_p убывают как $1/p$. По этим оценкам рассмотренная нами модель обладает большим ангармонизмом и лучше других описывает полученные экспериментальные данные. Совместный учет всех эффектов, вносящих вклад в ангармонизм,

позволит, по-видимому, улучшить качество теоретической модели СИД в полупроводниках.

Учет ангармонизма светоиндуцированной решетки ННЗ, обусловленного эффектом заполнения зоны при непрямых оптических переходах в кремнии, и рассмотрение взаимосвязи всех волн позволяют достаточно хорошо описывать дифракцию в высшие порядки в условиях сильного возбуждения ННЗ и тем самым получать дополнительную информацию о свойствах исследуемого материала. Требование удовлетворения математической модели всей совокупности экспериментальных данных для различных порядков дифракции существенно уменьшает произвол в оценке параметров полупроводника. Так, наилучшее согласие результатов описанного эксперимента с теоретической моделью достигается при $n_{eh} = -2.2 \cdot 10^{-22} \text{ см}^3$ и $\sigma_{eh} = 5.7 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$. Таким образом, n_{eh} оказывается примерно в 3 раза меньшим, чем следует из модели Друде. Следует отметить, что используемая нами модель не позволяет при возбуждении длиной волны 1.064 мкм получить концентрацию ННЗ, превышающую $\sim 0.35 N_0 \approx 2.5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, однако учет изменения температуры и расчет неравновесной функции распределения может повысить это значение.

Приведенные выше результаты могут служить основой для построения модели процесса, которая позволила бы в совокупности с экспериментальными измерениями определять параметры полупроводников достаточно однозначно. Для этого следует исключить из модели ряд приближений, главными из которых, на наш взгляд, являются приближение заданного поля при решении уравнения (7), пренебрежение насыщением межзонного поглощения в (11) и приближение малых углов дифракции, которое сильно ограничивает диапазон экспериментальных условий, описываемых моделью. К дополнительным поправкам, как показано в [7], может привести и учет распределения интенсивности по поперечному сечению пучков.

В заключение авторы выражают благодарность П. А. Апанасевичу и А. А. Афанасьеву за полезные замечания и обсуждения в ходе работы.

Л и т е р а т у р а

- [1] Woerdman J. P. // Philips Res. Rev. 1971. Suppl. N 7.
- [2] Борщ А. А., Бродин М. С., Овчар В. В. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1973. Т. 18. С. 679—682.
- [3] Одулов С. Г., Пешко И. И., Соскин М. С., Хижняк А. И. // УФЖ. 1976. Т. 21. С. 1869—1873.
- [4] Jarasiunas K., Vaitkus J. // Phys. St. Sol. A. 1977. V. 44. N 11. P. 793—800.
- [5] Мизрухин Л. В., Пешко И. И., Соскин М. С., Хижняк А. И. // УФЖ. 1983. Т. 28. № 5. С. 675—683.
- [6] Вайткус Ю., Ярашюнас К. // Лит. физ. сб. 1979. Т. 19. № 2. С. 211—231.
- [7] Eichler H. J., Massmann F. // J. Appl. Phys. 1982. V. 53. N 4. P. 3237—3242.
- [8] Бонч-Бруевич А. М., Имас Я. А., Либенсон М. Н. и др. // ЖТФ. 1977. Т. 47. № 3. С. 609—616.
- [9] Маев Р. Г., Полуэктов И. А., Пустовойт В. И. // ФТТ. 1972. Т. 14. № 7. С. 2012—2020.
- [10] Горшков В. Г., Данилейко Ю. К., Лебедева Т. П., Нестеров Д. А. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 45. С. 196—199.
- [11] Вайткус Ю., Ярашюнас К. // Лит. физ. сб. 1975. Т. 15. С. 265—274.
- [12] Апанасевич П. А., Афанасьев А. А., Урбанович А. И. // Квант. электр. 1975. Т. 2. С. 2423—2428.
- [13] Грибковский В. П. Теория поглощения и испускания света в полупроводниках. Минск, 1975. 464 с.
- [14] Democan M. C. // Int. J. Electronics. 1981. V. 51. N 1. P. 93—201.
- [15] Апанасевич П. А. Основы теории взаимодействия света с веществом. Минск, 1977. 495 с.

Институт физики АН БССР
Минск

Поступило в Редакцию
10 августа 1987 г.
В окончательной редакции
15 августа 1988 г.