

ВЛИЯНИЕ ПЕРЕЗАРЯДКИ МЕЛКИХ ПРИМЕСЕЙ НА ДЕФОКУСИРОВКУ ЛАЗЕРНОГО ЛУЧА В КРИСТАЛЛАХ КРЕМНИЯ

Балтрамеюнас Р., Велецкас Д., Скайстис Э.

Представлены результаты теоретического и экспериментального исследования влияния перезарядки мелких примесных центров в кристаллах кремния на светонаведенное изменение показателя преломления. Показано, что поляризуемость этих центров на частотах, близких к краю фундаментального поглощения, равна $\alpha_n(E) \approx 4 \cdot 10^{-22} \text{ см}^2$. Это необходимо учитывать при оценке светонаведенного изменения показателя преломления в кристаллах кремния.

Введение. Внимание к исследованиям явлений самовоздействия света в полупроводниках не уменьшается. Интерес обусловлен разносторонним применением этих явлений как для определения параметров неравновесной плазмы носителей (времени жизни и биполярного коэффициента диффузии носителей, скорости поверхностной рекомбинации, коэффициента двухфотонного поглощения и т. д. [1-4]), так и для практических целей (управления пространственно-временными параметрами лазерных пучков, обращения волнового фронта, оптической стабильности, динамических голограмм [5, 6]). Интерес стимулируется еще и тем, что механизм модуляции показателя преломления полупроводника светом не является вполне ясным. Так, в работах [7-9] показано, что на изменение показателя преломления влияют легирующие примеси. Другие же авторы считают, что примесный механизм модуляции Δn маловероятен из-за малой поляризуемости примесных центров [8]. В действительности приводимые в литературе величины поляризуемости мелких примесных центров, например атомов фосфора в кремнии (донор, $\Delta E_i = 0.045 \text{ эВ}$ [10]), охватывают интервал значений от 10^{-24} (атомный фосфор) до $\sim 10^{-19}$ [11, 12], 10^{-18} [13], $7 \cdot 10^{-16} \text{ см}^{-3}$ [14]. Поэтому как целесообразность численных оценок поляризуемости примесных центров в кристаллах кремния на частотах, близких к краю фундаментального поглощения, так и более глубокий анализ экспериментальных результатов, подтверждающих или опровергающих данный механизм изменения Δn , очевидны. Обсуждению этой проблемы и посвящена настоящая работа.

1. Поляризуемость мелких примесных центров и их вклад в нелинейную рефракцию

Поляризуемость примесных центров зависит от их энергии ионизации ΔE_i , эффективного радиуса состояний, эффективной массы электрона (дырки) и ее анизотропии [15]. Такие расчеты проведены в работах [11, 12]. Полученные результаты удовлетворительно согласуются с экспериментальными [16], полученными методом емкостной спектроскопии. Как теоретические, так и экспериментальные результаты (в области частот, далеких от собственной частоты поглощения кристалла) дают значения поляризуемости мелких центров в кремнии порядка 10^{-19} см^3 . Для нас больший интерес представляет зависимость поляризуемости этих примесных центров от частоты ω возбуждающего полупроводник света. Согласно [17, 18], поляризуемость отдельного центра в основном состоянии можно представить в виде

$$\alpha_n(E) = (C_n e^2 \hbar^2 / m_{e,h}) \sum_k [f_{0,k} / (\hbar \omega_{0,k})^2 - (\hbar \omega)^2], \quad (1)$$

где $\hbar \omega_{0,k} = E_k - E_0$, E_0 и E_k — энергия центра в основном и k -м состояниях (k пробегает как дискретный, так и непрерывный спектры), $C_n = 1 \div 20$ — константа, зависящая от модели центра [18], $m_{e,h}$ — масса электрона (дырки), $f_{0,k}$ — сила осциллятора. Рассмотрим два крайних случая: $\omega \gg \omega_{0,k}$; $\omega \ll \ll \omega_{0,k}$. В первом случае, применив правило суммы сил осцилляторов из выражения (1), получим

$$\alpha_n(E) = -C_n (e^2 / m_{e,h}) \omega^2, \quad (2)$$

т. е. поляризуемость центра не зависит от его энергетического положения. Во втором случае [18]

$$\alpha_n(E) = (C_n e^2 \hbar^2 / m_{e,h}) \Delta E_i^{-2}. \quad (3)$$

Следовательно, поляризуемость мелких центров $\alpha_n(E) \sim \Delta E_i^{-2}$, $m_{e,h}^{-1}$, а численные значения $\alpha_n(E)$ (для примесных центров As, Sb, P и др. в кремнии) согласуются с расчетными и экспериментальными результатами других авторов [11, 12, 16], если в выражении (3) принять $C_n = 4 \div 5$. Таким образом, поляризуемость тех же примесных центров в кремнии на частоте излучения лазера на основе АИГ: Nd^{3+} , согласно выражению (2), равна $\alpha_n(E) = (3 \div 4) \cdot 10^{-22} \text{ см}^3$.

Теперь оценим возможный вклад мелких примесей в изменение показателя преломления (Δn) полупроводника. В приближении эффективного поля Лорентц—Лоренца и в предположении, что примеси не взаимодействуют друг с другом, зависимость между изменением диэлектрической проницаемости среды и поляризуемостью центров имеет вид [13, 16]

$$\Delta \epsilon = 4\pi \alpha_n(E) \frac{\Delta N_{np}}{1 - 4\pi \alpha_n(E) (\Delta N_{np} / 3\epsilon_0)},$$

или, учитывая, что $\Delta \epsilon \simeq 2n_0 \Delta n$, а $4\pi \alpha_n(E) (\Delta N_{np} / 3\epsilon_0) \ll 1$, получим

$$\Delta n_{np} \simeq 2\pi \Delta N_{np} [\alpha_n(E) / n_0], \quad (4)$$

где ΔN_{np} — концентрация перезаряженных светом примесей, n_0 — показатель преломления невозбужденного кристалла. Подставляя в (4) выражение (2), получим

$$\Delta n_{np} \simeq -(2\pi C_n e^2 / m_{e,h} n_0 \omega^2) \Delta N_{np}. \quad (5)$$

Суммарное изменение показателя преломления возбужденного полупроводника (неравновесные носители и перезарядка ими центров) будет $\Delta n = \Delta n_{эл} + \Delta n_{np}$. Так как $\Delta n_{эл} = -(2\pi e^2 / n_0 \omega^2) \left(\frac{\Delta N}{m_e^*} + \frac{\Delta P}{m_h^*} \right)$ [19], ΔN , ΔP — концентрации неравновесных носителей заряда (ННЗ), то

$$\Delta n = -2\pi e^2 / n_0 \omega^2 \left[m_e^{*-1} \Delta N + m_h^{*-1} \Delta P + C_{n1} m_e^{-1} \Delta N_D + C_{n2} m_h^{-1} \Delta N_A + \dots \right]. \quad (6)$$

В общем случае в выражении (6) следует учитывать донорные, акцепторные примеси, экситонные состояния.

Концентрацию перезаряженных доноров (акцепторов) можно найти путем решения кинетических уравнений. Рассмотрим простой случай, изображенный на рис. 1, когда перезаряжается только один донорный уровень с коэффициентом захвата электронов γ_n . Система уравнений баланса такова:

$$\begin{aligned} dN/dt &= G - (\Delta N / \tau) + \gamma_n [N_{cM} m - (M - m) N], \\ dm/dt &= \gamma_n [(M - m) N - N_{cM} m], \\ \Delta P &= \Delta N + \Delta N_D, \end{aligned} \quad (7)$$

где $N = N_0 + \Delta N$, $m = m_0 + \Delta N_D$, $\Delta N \simeq G \tau$. В квазистационарном случае из (7) следует (такое предположение вполне оправдано для кристаллов Si), что

$$\Delta N_D = \frac{N_0 \Delta N}{N_{cM} + N_0 + \Delta N} = \begin{cases} \frac{\sqrt{N_{cM} M} \Delta N}{\sqrt{N_{cM} M} + \Delta N}, & \text{когда } N_{cM} \ll M, \\ \frac{M \Delta N}{N_{cM} + \Delta N}. & \text{когда } N_{cM} \gg M, \end{cases} \quad (8)$$

где $N_0 = (N_{cM}/2) \{ \sqrt{1 + 4M/N_{cM}} - 1 \}$, $N_{cM} = (1/g) N_c \exp(-\Delta E_i/kT)$, $g = 2$ для донорных и $1/2$ для акцепторных уровней. Из полученного решения (8) следует, что при низких температурах, когда $N_{cM} \ll M$, $\Delta N_D = \Delta N$, если $\Delta N \ll \sqrt{N_{cM} M}$, и $\Delta N_D = \sqrt{N_{cM} M}$, если $\Delta N \gg \sqrt{N_{cM} M}$. При высоких температурах, когда $N_{cM} \gg M$, $\Delta N_D = M/N_{cM}$, если $\Delta N \ll N_{cM}$, и $\Delta N_D = M$, если $\Delta N \gg N_{cM}$.

Эти случаи схематически представлены на рис. 1, б.

Таким образом, оценка изменения Δn (при следующих параметрах кристаллов кремния: $m_e^* = 0.19$, $M = 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, $\Delta N = 2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, $n_0 = 3.56$, $T = 300 \text{ К}$, $\hbar \omega = 1.164 \text{ эВ}$, $\Delta E_i = 0.11 \text{ эВ}$) приводит к величинам $\Delta n_{\text{пр}} = -7.5 \cdot 10^{-22}$ $\Delta N =$

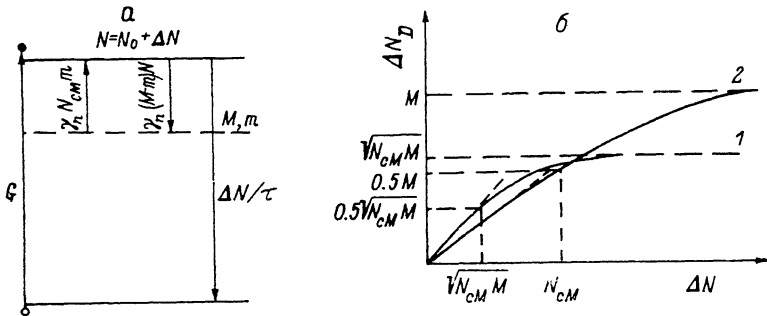


Рис. 1. Схема электронных переходов (а) и зависимость заполнения примесного центра (б) от концентрации ННЗ, полученная при решении уравнения (7) в двух предельных случаях.

1 - $N_{cM} \ll M$, 2 - $N_{cM} \gg M$.

$= -1.5 \cdot 10^{-4}$, а $\Delta n_{\text{пр}} = -5 \cdot 10^{-5}$. Однако следует учесть, что обычно в кристаллах Si имеются и другие примесные центры: O_2 (0.16 эВ, $M \approx 10^{18} \text{ см}^{-3}$), S (0.18 эВ), N (0.14 эВ), P (0.045 эВ) и др. [10]. Каждая из этих примесей внесет свой вклад в изменение $\Delta n_{\text{пр}}$, и при определенных интенсивности возбуждения, температуре кристалла, концентрации примесных центров вполне реальна возможность «примесного механизма» изменения Δn в кремнии. Подтверждаются ли эти оценки экспериментально?

2. Экспериментальные результаты

Исследована зависимость дефокусировки света в просветленных кристаллах кремния марок КЭФ-5, КЭФ-500, КДБ-10 (толщина $350 \div 400 \text{ мкм}$, время жизни свободных носителей $\tau = 1 \div 4 \text{ нс}$ и существенно не зависит от температуры кристалла). Схема экспериментальной установки приведена в работе [20]. Сканирование светового поля за образцом проводилось как по методике, описанной в [20], так и с помощью линейного фотоприемника типа ПЗС с размерами отдельных элементов $24 \times 200 \text{ мкм}$. Кристаллы возбуждались первой гармоникой излучения однододового лазера на основе АИГ: Nd^{3+} [$\tau_{\text{имп}} = (18 \pm 1) \text{ нс}$, $I_{0 \text{ max}} = 30 \text{ МВт/см}^2$].

На рис. 2 в линейном масштабе приведена зависимость дефокусировки света, т. е. изменения диаметра (на уровне e^{-2}) лазерного луча за образцом при наведенной нелинейности Δn , от плотности мощности возбуждения. Измерения проведены при разных температурах образца. Видно, что дефокусировка лазерного пучка в кристалле Si заметно зависит от температуры. Так, при температуре кристалла 400 К (рис. 2, кривая 1), когда для большинства мелких примесных центров выполняется условие $N_{cM}, N_{eM} \gg M$, дефокусировка света до определен-

ного уровня возбуждения возрастает линейно с последующим переходом в область насыщения.¹ При низких температурах ($T \approx 200$ К, кривая 2) наблюдается ступенчатая зависимость дефокусировки света от интенсивности возбуждения. Такая зависимость является следствием того, что для одних, более глубоких примесных центров выполняется условие $N_{cm} \ll M$ и $\Delta N_D = \sqrt{N_{cm}M}$, а для других (например Р, В) — еще $N_{cm} \geq M$ и $\Delta N_D = M\Delta N / (N_{cm} + \Delta N)$. При $T < 120$ К практически полностью реализуется условие $N_{cm} \ll M$ для всех мелких примесных центров в кристаллах кремния и, как следствие этого, наблюдается

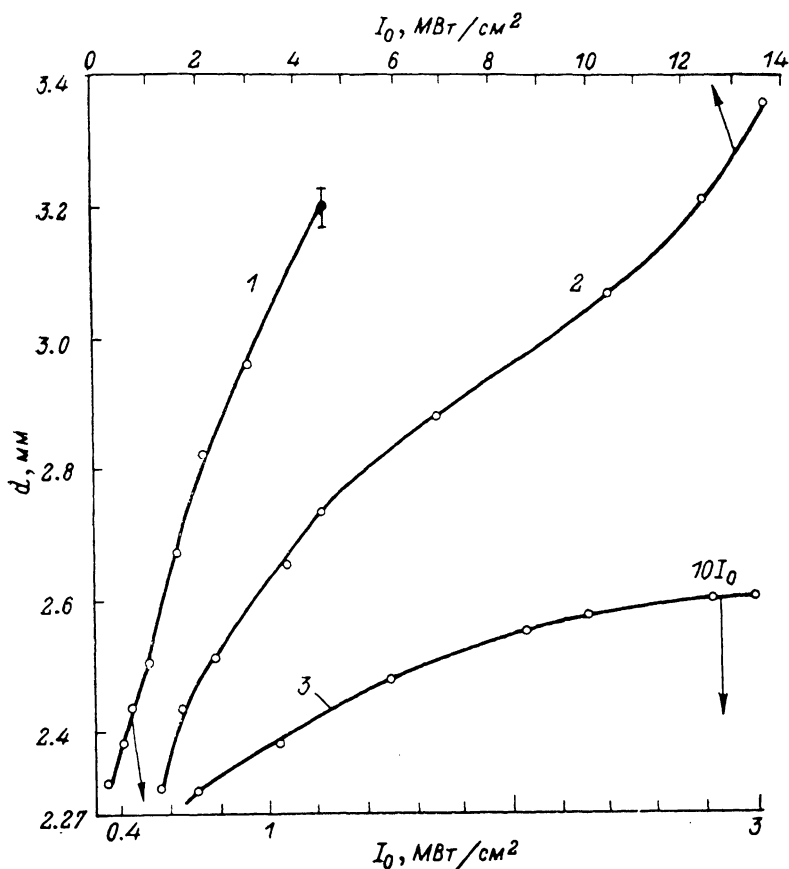


Рис. 2. Зависимость дефокусировки света от плотности мощности возбуждения при разных температурах кристалла кремния марки КДБ-10.

T , К: 1 — 400, 2 — 200, 3 — 130.

переход к насыщению дефокусировки света. Полную реализацию условия $\Delta N_D = \Delta N$, когда $\Delta N \ll \sqrt{N_{cm}M}$, ограничивает чувствительность методики, а верхний предел $\Delta N_D = \sqrt{N_{cm}M}$ — плотность мощности примененного лазера ($I_{0 \max} = 30$ МВт/см²), так как с понижением температуры образцов Si падает коэффициент поглощения лазерного света $\kappa_0 = (T/172.3)^{4.25}$ [21], и выполнить условие $\Delta N \gg \sqrt{N_{cm}M}$ трудно. Также возможно, что при низкой температуре кристалла и достаточно высокой интенсивности возбуждения появится вклад в Δn другого члена Δn_{ex} , так как перезарядка примесей ННЗ становится несущественной (мал вклад ΔN_D).

Из формулы (8) следует, что при постоянной концентрации ННЗ число перезаряженных доноров (акцепторов) меняется с понижением температуры кристалла. Эта зависимость в интервале температур 250–400 К показана на рис. 3

¹ Ввиду большого искажения гауссовского профиля распределения интенсивности за образцом из-за сильной дефокусировки света и его нелинейного поглощения на ННЗ измерения в данной области интенсивностей не проводились.

сплошной кривой [для расчета принято, что $\Delta E_i = 0.045$ эВ, $M = 5 \cdot 10^{17}$ см⁻³, ΔP , $\Delta N = 2 \cdot 10^{17}$ см⁻³, $N_r = 1.04 \cdot 10^{19} (T/300)^{1.5}$ см⁻³]. Полученный экспериментально результат в кристалле марки КДБ-10 изображен точками на том же рисунке. Видно, что с понижением температуры кристалла кремния самодефокусировка лазерного луча увеличивается, хотя концентрация ННЗ поддерживается постоянной. Такая зависимость дефокусировки света возможна только при примесном механизме изменения Δn , т. е. тогда, когда $\Delta n_{пр} > \Delta n_{эл}$.

Эти выводы подтверждаются и результатами, приведенными на рис. 4. В работе [22] показано, что (при линейном изменении концентрации ННЗ от интенсивности возбуждения) концентрация перезаряженных доноров изменится линейно в некомпенсированных кристаллах и сублинейно в компенсированных. Следовательно, при примесном механизме изменения Δn степень наклона кривой дефокусировки света d/d_0 в компенсированных кристаллах должна быть меньше степени наклона кривой для некомпенсированных. Если дефо-

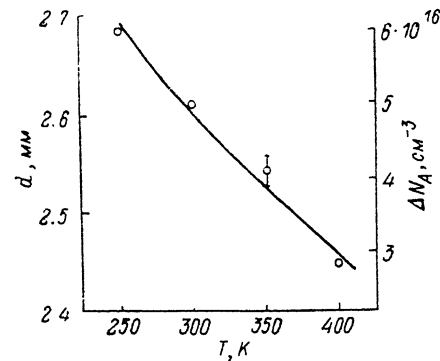


Рис. 3. Изменение заполнения центра и дефокусировки света в кристалле Si с температурой при постоянной концентрации ННЗ.

Сплошная кривая — теоретический расчет ΔN_A , точки — экспериментальный результат.

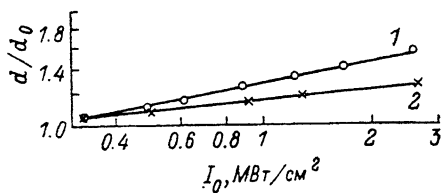


Рис. 4. Зависимость степени дефокусировки света от плотности мощности возбуждения в некомпенсированном образце кремния марки КЭФ-5 (1) и компенсированном марки КЭФ-500 (2).

кусировка света обусловлена $\Delta n_{эл}$, то различий в степенях наклона кривых обоих кристаллов не должно быть, так как $\Delta N \propto I$. Экспериментальный результат (в двойном логарифмическом масштабе) для кристаллов КЭФ-5 и КЭФ-500 приведен на рис. 4. Видно, что в некомпенсированном кристалле КЭФ-5 степень наклона кривой зависимости дефокусировки света от интенсивности возбуждения почти в 2 раза больше, чем в компенсированном (кривые нормированы к одной величине d/d_0 при низком уровне возбуждения, и сравнивать их по абсолютной величине d/d_0 не следует). Следовательно, компенсация примесей в кремнии влияет на интенсивностную зависимость нелинейного показателя преломления.

Заключение. Таким образом, как следует из вышеизложенных результатов, мелкие примесные состояния оказывают заметное влияние на изменение показателя преломления в возбужденных кристаллах кремния. Поляризуемость мелких примесных центров на частоте, близкой к краю фундаментального поглощения кремния, не является ничтожно малой, и это следует учитывать при анализе нелинейной рефракции. Также следует отметить, что при любом из рассмотренных механизмов изменение показателя преломления определяется концентрацией неравновесных носителей, поэтому отличить механизмы друг от друга весьма трудно. Важно и то, что открываются пути целенаправленного управления нелинейной рефракцией в возбужденных полупроводниках, например технологически, путем введения легирующих примесей. Это, в свою очередь, открывает новые перспективы для создания элементной базы нелинейной оптики с управляемыми параметрами.

Авторы признательны профессору Ю. Вайткосу за критические замечания к статье.

- [1] Вайткус Ю., Пятраускас М., Ярашюнас К. // ФТП. 1982. Т. 16. В. 6. С. 1013—1018.
- [2] Аршев И. П., Субашиев В. К., Фараджев Б. Г. // ФТП. 1987. Т. 21. В. 5. С. 893—898.
- [3] Аршев И. П., Степанова М. И., Субашиев В. К., Фараджев Б. Г. // ФТТ. 1987. Т. 29. В. 11. С. 3362—3367.
- [4] Вайткус Ю., Ярашюнас К. // Лит. физ. сб. 1979. Т. 19. № 12. С. 211—231.
- [5] Данилейко Ю. К., Миляев В. А., Минаев Ю. П., Прохоров А. М., Сидорин А. В., Шарков А. В. // ЖЭТФ. 1986. Т. 91. В. 1. С. 166—171.
- [6] Ивакин Е. В., Одулов С. Г., Рубанов А. С., Соскин М. С. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1981. Т. 45. В. 8. С. 1403—1411.
- [7] Балтрамеюнас Р., Велецкас Д. // ФТП. 1988. Т. 22. В. 1. С. 146—147.
- [8] Вайткус Ю., Гаубас Э., Ярашюнас К., Михайлов В. // ФТП. 1983. Т. 17. В. 9. С. 1552—1556.
- [9] Балтрамеюнас Р., Велецкас Д., Дебейкис К. // Лазеры и оптическая нелинейность. Вильнюс, 1987.
- [10] Милнс А. Примеси с глубокими уровнями в полупроводниках. М., 1977. 562 с.
- [11] Palaniandi E. // Phys. St. Sol. (b). 1980. V. 100. P. 321—325.
- [12] Karthauzer E., Schmit J., Szwacka T. // Sol. St. Commun. 1985. V. 53. N 6. P. 551—553.
- [13] Гладков П. С., Гигодман В. Б., Журкин Б. Г., Пенни Н. А. // ФТП. 1971. Т. 5. В. 11. С. 2219—2221.
- [14] Годик Э. Э., Кузнецов А. И. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1978. Т. 42. В. 6. С. 1206—1207.
- [15] Матвеев А. Н. Оптика. М., 1985. 351 с.
- [16] Bethin J., Castner T. G., Lee N. K. // Sol. St. Commun. 1974. V. 14. P. 1321—1324.
- [17] Гиршфельдер Дж., Кертисс Ч., Берд М. Молекулярная теория газов и жидкостей. М., 1961. 930 с.
- [18] Бонч-Бруевич В. Л., Искра В. Д. // ФТП. 1977. Т. 11. В. 4. С. 678—687.
- [19] Woerdman J. P. // Phil. Res. Rep. (Suppl.). 1971. N 7. P. 1—82.
- [20] Балтрамеюнас Р., Велецкас Д., Каптураускас И. // ФТТ. 1985. Т. 27. В. 10. С. 2931—2935.
- [21] Svantesson K. Optical absorption and free carrier recombination in silicon at high free carrier densities. Stockholm, 1979. 8 p.
- [22] Леванюк А. П., Осипов В. В. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1977. Т. 41. В. 4. С. 752—770.

Вильнюсский государственный
университет им. В. Капсукаса

Получена 22.11.1988
Принята к печати 7.03.1989