

Терагерцовое излучение при межзонном фотовозбуждении полупроводников IV группы при комнатной температуре

© А.О. Захарьин*, А.В. Бобылев*+, С.В. Егоров*•, А.В. Андрианов*†

* Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

+ Санкт-Петербургский государственный политехнический университет, 195251 Санкт-Петербург, Россия

• Санкт-Петербургский государственный горный университет, 199006 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 23 июля 2014 г. Принята к печати 25 августа 2014 г.)

Обнаружено и исследовано терагерцовое излучение при межзонном фотовозбуждении полупроводников IV группы (Si:B и Ge:Ga) при комнатной температуре излучением полупроводникового лазера видимого диапазона (660 нм). Установлено, что интенсивность излучения значительно возрастает при возрастании температуры кристалла выше комнатной, а спектр излучения при этом смещается в сторону высоких частот. Спектры терагерцового излучения германия и кремния мало различаются между собой. Зависимость интенсивности излучения от интенсивности накачки близка к линейной. Установленные закономерности позволяют связать наблюдаемое терагерцовое излучение с эффектом разогрева кристалла в области поглощения излучения накачки.

1. Введение

В последние два десятилетия интенсивно исследуются электромагнитные волны терагерцового (ТГц) диапазона (с частотами колебаний 0.1–10 ТГц). Интерес к ТГц излучению обусловлен перспективами его применения в диагностических технологиях для химии, медицины и биологии, в системах контроля окружающей среды [1]. Важной задачей ТГц фотоники является создание простого, надежного и эффективного источника ТГц излучения. Один из возможных вариантов эмиттера ТГц излучения может быть реализован с использованием оптических переходов между энергетическими уровнями мелких примесных центров в полупроводниках, возникающих, например, при электрическом пробое примесей в Ge и Si [2–7]. На оптических переходах между уровнями акцепторной примеси в деформированном *p*-Ge была достигнута и ТГц лазерная генерация [8,9]. Однако вследствие относительно малых энергий ионизации примесей в германии и кремнии (например, порядка 11 мэВ для акцепторной примеси Ga в германии и порядка 45 мэВ для примесей В и Р в кремнии) примесная ТГц электролюминесценция (ЭЛ) становится мало эффективной при температурах выше азотной, поскольку большая часть примесных центров оказывается ионизованной уже в состоянии равновесия и не дает вклада в излучение [10]. В работе [11] было впервые показано, что примесные ТГц излучательные переходы могут быть вызваны также межзонным фотовозбуждением полупроводников, легированных мелкими примесями, и такая ТГц фотолюминесценция (ФЛ) была экспериментально обнаружена (в *n*-GaAs, *p*-Ge, *n*-GaN [11–13]). ТГц ФЛ привлекательна тем, что для возбуждения излучения не требуются высокие электрические поля (как, например, в *n*-GaN

для достижения ударной ионизации примесей и ТГц ЭЛ необходимо поле порядка 1 кВ/см [14]), а достаточно лишь сравнительно мало интенсивного лазера или даже светодиода [11–13]. Механизм примесной ТГц ФЛ тесно связан с особенностями рекомбинации неравновесных электронов и дырок в легированных полупроводниках [12,13]. Рекомбинация неравновесных носителей с участием нейтральных примесных центров приводит к формированию системы ионизованных примесей (например, доноров) и свободных носителей (например, электронов), захват последних на заряженные центры сопровождается ТГц излучением, аналогично ситуации, имеющей место при пробое примесей электрическим полем. Примесная ТГц ФЛ так же как и ТГц ЭЛ интенсивна только при низких температурах вследствие вышеупомянутой термической ионизации примесей. В экспериментах [11–13] наблюдалось сильное ослабление ТГц ФЛ при повышении температуры выше гелиевой, причем энергия температурного тушения ТГц сигнала по порядку величины совпадает с энергией ионизации мелкой легирующей примеси.

Необходимо отметить, что в недавней работе [15] сообщалось о наблюдении интенсивной ТГц фотолюминесценции в кристаллах германия и кремния при комнатной температуре в условиях фотовозбуждения их непрерывным ИК лазером с длиной волны 1050.5 нм. Данное наблюдение вызывает большой интерес как с научной, так и с прикладной точек зрения ввиду очевидной практической значимости эффекта. Однако авторы работы [15] связывают ТГц излучение с переходами между уровнями мелких примесей, что в условиях высоких температур представляется маловероятным вследствие факторов, упомянутых выше. При этом в работе приведен спектр ТГц излучения германия, в котором довольно трудно увидеть какие-либо указания на внутрицентровые

† E-mail: alex.andrianov@mail.ioffe.ru

оптические переходы. Поэтому возникла необходимость в более детальном исследовании ТГц ФЛ в условиях комнатных температур.

В данной работе было обнаружено ТГц излучение в кристаллах Ge:Ga и Si:B при возбуждении светом лазера видимого диапазона (660 нм) при комнатных температурах и исследован его механизм.

2. Детали эксперимента

В качестве образцов использовались пластинки Ge:Ga с $N_A - N_D \approx 3 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ и Si:B с $N_A - N_D \approx 2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ размерами $5 \times 5 \text{ мм}$ и толщиной 500 мкм . Заготовки образцов вырезались из ростовых слитков, после чего последовательно шлифовались с использованием порошков с размером зерна 25 и 10 мкм, а далее полировались алмазными пастами с размером зерна до 2 мкм. Перед измерениями образцы травились в полирующем травителе СП4А. Для проведения измерений исследуемые образцы размещались в оптическом криостате с регулируемой температурой, оптимизированном для ТГц области спектра. В качестве источника фотовозбуждения использовался непрерывный полупроводниковый лазер с длиной волны 660 нм. Лазерное излучение, модулируемое механическим прерывателем на частоте 75 ГГц, после прохождения через серию малых диафрагм и фильтров, предотвращающих проникновение в измерительную часть установки теплового фона лазера, фокусировалось на поверхность образца в пятно диаметром порядка 2 мм. При этом мощность лазерного излучения на образце не превышала 40 мВт. ТГц люминесценция измерялась в геометрии „на проход“, но целый ряд контрольных экспериментов проводился также и в геометрии „обратного рассеяния“. Для спектральных измерений использовался фурье-спектрометр с шаговым сканированием интерферограммы, описанный в [16]. В настоящей работе использовался лавсановый светоделитель толщиной 12 мкм, обеспечивающий работу спектрометра в области $5\text{--}240 \text{ см}^{-1}$. Сигнал ТГц излучения измерялся с помощью охлаждаемого жидким гелием Si болометра методом синхронного детектирования на частоте модуляции лазера накачки.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

На рис. 1 приведена температурная зависимость интегральной интенсивности ТГц фотолюминесценции *p*-Ge(Ga), измеренная в интервале температур 4.2–375 К. При гелиевых температурах ТГц фотолюминесценция обусловлена оптическими переходами между уровнями $2\Gamma_8^-$ и $1\Gamma_8^+$ акцепторной примеси, а также переходами горячих дырок из состояний в валентной зоне на основное состояние акцептора $1\Gamma_8^+$ [11]. При возрастании температуры выше гелиевой интенсивность

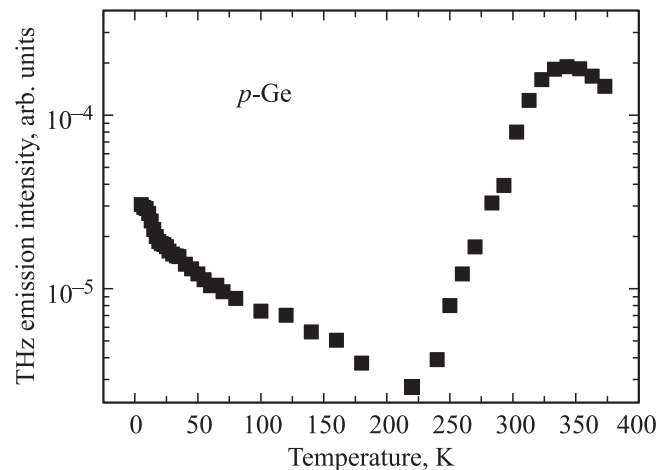


Рис. 1. Температурная зависимость интегральной интенсивности ТГц фотолюминесценции в *p*-Ge(Ga).

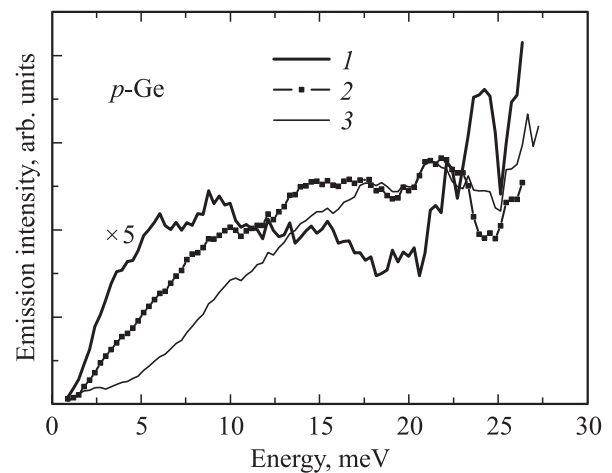


Рис. 2. Спектры ТГц излучения *p*-Ge(Ga) при температурах, К: 1 — 290, 2 — 343, 3 — 373. Спектры нормированы на спектральную чувствительность измерительной системы.

примесного ТГц излучения существенно падает вследствие термической ионизации нейтральных акцепторных центров и это демонстрирует рис. 1. Однако при температурах выше 220–240 К можно видеть сильное возрастание интенсивности ТГц сигнала, и при $T = 293 \text{ К}$ ТГц излучение становится интенсивней, чем при температуре жидкого гелия. При $T = 340 \text{ К}$ интенсивность ТГц излучения превышает его уровень при температуре жидкого гелия уже почти в 7 раз. Сильный рост интенсивности ТГц люминесценции с температурой в области 240–340 К свидетельствует о включении при высоких температурах нового механизма излучения, причем не связанного с мелкими примесными центрами. Рис. 2 показывает серию спектров ТГц люминесценции *p*-Ge, измеренных при высоких температурах. Видно, что спектры не содержат острых особенностей, а представляют собой практически бесструктурный фон. Обращает на себя внимание тот факт, что в изучаемом спектральном

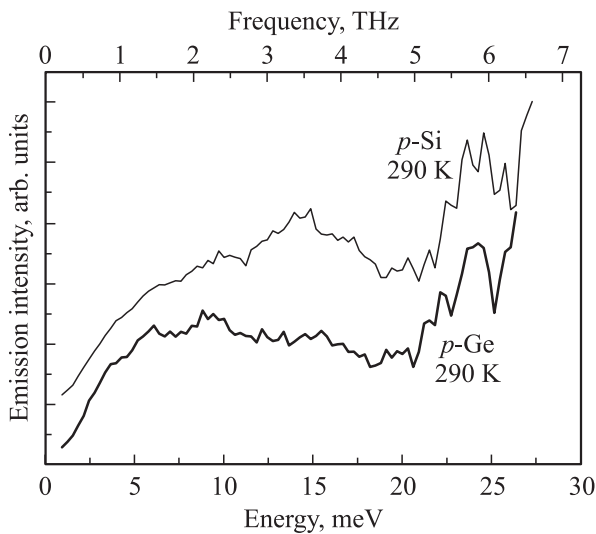


Рис. 3. Спектры ТГц излучения образцов *p*-Ge и *p*-Si, измеренные при комнатной температуре. Спектры нормированы на спектральную чувствительность измерительной системы. Спектральные кривые смещены по вертикали для ясности.

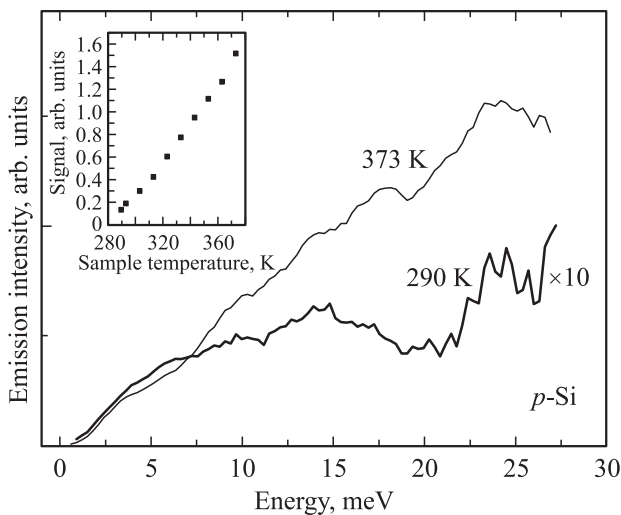


Рис. 4. Спектры ТГц излучения в *p*-Si(B), измеренные при температурах 290 и 373 К. Спектры нормированы на спектральную чувствительность измерительной системы. На вставке показана температурная зависимость интегральной интенсивности ТГц излучения при температурах вблизи и выше комнатной.

диапазоне низкоэнергетический фронт спектра излучения заметно смещается в сторону больших энергий при повышении температуры. Последнее можно объяснить тем, что с ростом температуры происходит смещение к более высоким энергиям максимума спектра излучения, который, однако, лежит по энергии значительно выше, чем исследуемый участок спектра.

ТГц излучение при комнатной и более высоких температурах было обнаружено нами также и в кристаллах *p*-Si(B). На рис. 3 показаны для сравнения спектры ТГц

люминесценции *p*-Ge и *p*-Si. Можно видеть, что спектры излучения двух материалов очень похожи между собой, хотя энергии связи мелких примесей в них отличаются почти в 4 раза. Этот факт также свидетельствует о том, что наблюдаемое излучение не связано с оптическими переходами с участием состояний мелких примесных центров. Интенсивность ТГц излучения в кремнии также сильно возрастает при повышении температуры, причем рост интенсивности излучения с температурой — монотонный (см. вставку на рис. 4). На рис. 4 приведены спектры ТГц излучения *p*-Si, измеренные при 290 и 373 К. Здесь также можно видеть смещение низкоэнергетического фронта спектра в сторону больших энергий при повышении температуры.

С учетом потерь на сбор излучения и доставку его к детектору мощность ТГц излучения в *p*-Si и *p*-Ge при 295 К и мощности фотовозбуждения 40 мВт составляет порядка 26 и 19 нВт соответственно. Зависимость интенсивности ТГц излучения от интенсивности фотовозбуждения приведена на рис. 5. Для *p*-Si эта зависимость хорошо описывается линейным законом. Для кристаллов *p*-Ge видна небольшая сублинейность в зависимости ТГц излучения от интенсивности накачки (зависимость можно описать законом $I_{PL} \propto J_{exc}^{0.8}$). Необходимо добавить, что установленные свойства ТГц излучения проявляются как в геометрии „на проход“, так и в геометрии „обратного рассеяния“.

Установленные закономерности позволяют заключить, что ТГц излучение, наблюдаемое в кристаллах *p*-Ge и *p*-Si при стационарном межзонном фотовозбуждении при комнатных температурах, не связано с примесными оптическими переходами. По нашему мнению, данное ТГц излучение, скорее всего, связано с эффектом разогрева кристалла в области поглощения излучения

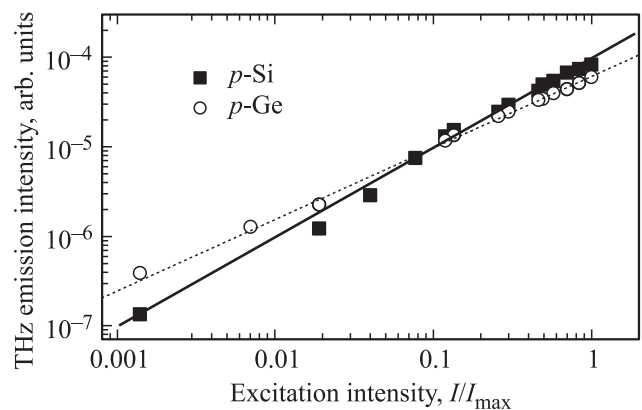


Рис. 5. Зависимость интегральной интенсивности ТГц излучения от интенсивности фотовозбуждения при $T = 295$ К. Максимальная интенсивность фотовозбуждения, J_{max} , составляла 1 Вт/см^2 . Точки — результат эксперимента. 1 — *p*-Si, 2 — *p*-Ge. Сплошная кривая — результат аппроксимации данных зависимостью вида $I_{PL} = A J_{exc}$, пунктирная кривая — результат аппроксимации данных зависимостью вида $I_{PL} = B J_{exc}^{0.8}$, где A и B — константы.

накачки. Причем за наблюдаемое излучение может быть ответственна только осциллирующая во времени с частотой модуляции лазера накачки часть отклонения температуры кристалла от равновесной. Выполненные нами модельные тепловые расчеты с учетом реальных коэффициентов поглощения излучения с длиной волны 660 нм ($2 \cdot 10^5$ и $4.2 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ для кремния и германия соответственно, при 300 К [17]) и реальной геометрии эксперимента показывают, что перегрев кристалла, δT , в области поглощения излучения накачки, осциллирующей с частотой модуляции лазера накачки 75 Гц и амплитудой порядка 0.1 К, вполне может иметь место. Это должно приводить к появлению переменной составляющей теплового излучения, для спектральной плотности которого δR и интегральной интенсивности δI можно получить:

$$\delta R \propto \left[\frac{\partial \rho(\nu, T)}{\partial T} \right]_{T=T_0} \delta T \propto \frac{h\nu^4}{k_B T_0^2} \frac{\exp\left(\frac{h\nu}{k_B T_0}\right)}{\left[\exp\left(\frac{h\nu}{k_B T_0}\right) - 1\right]^2} \delta T, \quad (1)$$

$$\delta I \propto \left[\int_{\nu_1}^{\nu_2} \frac{\partial \rho(\nu, T)}{\partial T} d\nu \right]_{T=T_0} \delta T \propto \delta T T_0^3, \quad (2)$$

где T_0 — равновесная температура решетки; $\rho(\nu, T)$ — функция Планка; частоты ν_1 и ν_2 определяют исследуемый спектральный диапазон, а остальные символы имеют обычное значение. Из (1) следует, что такое излучение должно иметь широкий, бесструктурный спектр с максимумом при энергии $\varepsilon_{\max} = 3.84 k_B T_0$, смещающимся в сторону высоких энергий с ростом равновесной температуры и находящимся далеко за пределами исследуемого участка спектра излучения. Из (2) видно, что интенсивность излучения должна сильно возрастать с ростом равновесной температуры. Из энергетических соображений понятно, что температура перегрева, δT , должна быть пропорциональна интенсивности фотовозбуждения, а значит и интенсивность ТГц излучения должна линейно зависеть от интенсивности накачки. Именно такие закономерности и наблюдаются в эксперименте. Отметим также, что оценки мощности ТГц излучения такого рода при амплитуде переменной составляющей температуры перегрева кристалла $\delta T = 0.1$ К дают интегральные мощности излучения, близкие к наблюдаемым в эксперименте. Небольшое отклонение от линейного закона в зависимости интенсивности ТГц излучения от интенсивности накачки (рис. 5), а также существование максимума в температурной зависимости интенсивности излучения (рис. 1) для *p*-Ge не до конца понятно и выяснение причин этих особенностей требует дополнительных исследований.

Таким образом, в работе обнаружено и исследовано ТГц излучение при межзонном фотовозбуждении германия и кремния излучением непрерывного полупроводникового лазера видимого диапазона в условиях комнатных температур. Установленные закономерности

позволяют связать наблюдаемое терагерцовое излучение с эффектом разогрева кристалла в области поглощения излучения накачки. Обнаруженное излучение имеет сравнительно высокую интенсивность: при комнатной температуре и мощности фотовозбуждения на образце 40 мВт (длина волны 660 нм) интегральная мощность ТГц излучения составляет порядка 26 и 19 нВт для кремния и германия соответственно. Обнаруженное излучение, возможно, найдет применение в ТГц технике, но для практических применений необходимо изучить его временные характеристики и предельно возможные частоты его модуляции.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, а также ряда специальных программ президиума РАН.

Авторы выражают благодарность В.А. Шалыгину за полезное обсуждение результатов работы.

Список литературы

- [1] P.H. Siegel. IEEE Trans. Microwave Theory Tech., **50**, 910 (2002).
- [2] S.H. Koenig, R.D. Brown. Phys. Rev. Lett. **4**, 170 (1960).
- [3] T.N. Adam, R.T. Troeger, S.K. Ray, P.-C. Lv, J. Kolodzey. Appl. Phys. Lett., **83**, 713 (2003).
- [4] А.В. Андрианов, А.О. Захарьин, И.Н. Яссиевич, Н.Н. Зиновьев. Письма ЖЭТФ, **79**, 448 (2004).
- [5] P.-C. Lv, R.T. Troeger, T.N. Adam, S. Kim, J. Klodzey, I.N. Yassievich, M.A. Odnobludov, M.S. Kagan. Appl. Phys. Lett., **85**, 22 (2004).
- [6] P.-C. Lv, R.T. Troeger, X. Zhang, T.N. Adam, J. Klodzey, I.N. Yassievich, M.A. Odnobludov. J. Appl. Phys., **98**, 093 710 (2005).
- [7] А.В. Андрианов, А.О. Захарьин, И.Н. Яссиевич, Н.Н. Зиновьев. Письма ЖЭТФ, **83**, 410 (2006).
- [8] И.В. Алтухов, М.С. Каган, К.А. Королев, М.А. Одноблудов, В.П. Синис, Е.Г. Чиркова, И.Н. Яссиевич. ЖЭТФ, **115**, 89 (1999).
- [9] Yu.P. Gousev, I.V. Altukhov, K.A. Korolev, V.P. Sinis, M.S. Kagan, E.E. Haller, M.A. Odnobludov, I.N. Yassievich, K.-A. Chao. Appl. Phys. Lett., **75**, 757 (1999).
- [10] G. Xuan, S. Kim, M. Copping, N. Sustersic, J. Kolodzey, P.-C. Lv. Appl. Phys. Lett., **91**, 061 109 (2007).
- [11] А.В. Андрианов, А.О. Захарьин, Ю.Л. Иванов, М.С. Кипа. Письма ЖЭТФ, **91**, 102 (2010).
- [12] А.О. Zakhar'in, A.V. Andrianov, A.Yu. Egorov, N.N. Zinov'ev. Appl. Phys. Lett., **96**, 211 118 (2010).
- [13] А.О. Захарьин, А.В. Бобылев, А.В. Андрианов. ФТП, **46**, 1158 (2012).
- [14] V.A. Shalygin, L.E. Vorobjev, D.A. Firsov, V.Yu. Panevin, A.N. Sofronov, G.A. Melentyev, A.V. Antonov, V.I. Gavrilenko, A.V. Andrianov, A.O. Zakhar'in, S. Suihkonen, P.T. Torma, M. Ali, H. Lipsanen. J. Appl. Phys., **106**, 123 523 (2009).
- [15] H. Dezaki, J. Menglong, S. Balasekaran, T. Tanabe, Y. Oyama. Key Eng. Mater., **500**, 66 (2012).
- [16] Н.Н. Зиновьев, А.В. Андрианов, В.Ю. Некрасов, Л.В. Беляков, О.М. Сресли, Г. Хилл, Дж.М. Чемберлен. ФТП, **36**, 234 (2002).
- [17] W.C. Dash, R. Newman. Phys. Rev., **99**, 1151 (1955).

Редактор Т.А. Полянская

Terahertz emission under interband excitation of IV group semiconductors at room temperature

*A.O. Zakhar'in**, *A.V. Bobylev***, *S.V. Egorov*•*,
*A.V. Andrianov**

* Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Science,
194021 St. Petersburg, Russia

+ St. Petersburg State Polytechnical University,
195251 St. Petersburg, Russia

• St. Petersburg State Mining University,
199006 St. Petersburg, Russia

Abstract Terahertz emission from IV group semiconductors (Si:B and Ge:Ga) at room temperature under the excitation by semiconductor laser radiation of visible range (660 nm) has been observed and studied. It was established that the emission intensity strongly increases with increase of crystal temperature above the room temperature. At that, the emission spectrum shifts to higher frequencies. The emission spectra of germanium and silicon are quite similar. The terahertz emission intensity versus the pump excitation is practically linear. The established regularities allow for attribution the observed terahertz emission to effect of crystal heating in the region of absorption of the pump radiation.