

Перестройка спектра терагерцового стимулированного излучения при внутрицентровом оптическом возбуждении одноосно-деформированного Si:Bi

© Р.Х. Жукавин¹, К.А. Ковалевский,¹ С.Г. Павлов², N. Deßmann³, A. Pohl⁴, В.В. Цыпленков¹, Н.В. Абросимов⁵, Н. Rietmann⁵, Н.-W. Hübers^{2,4}, В.Н. Шагин¹

¹ Институт физики микроструктур Российской академии наук, 603087 Нижний Новгород, Россия

² Institute of Optical Sensor Systems, German Aerospace Center (DLR), 12489 Berlin, Germany

³ Radboud University Nijmegen, FELIX Laboratory, 6525 ED Nijmegen, The Netherlands

⁴ Department of Physics, Humboldt-Universität zu Berlin, 12489 Berlin, Germany

⁵ Leibniz-Institut für Kristallzüchtung (IKZ), 12489 Berlin, Germany

E-mail: zhur@ipmras.ru

Поступила в Редакцию 15 апреля 2020 г.

В окончательной редакции 21 апреля 2020 г.

Принята к публикации 21 апреля 2020 г.

Представлены результаты экспериментальных и теоретических исследований перестройки спектра терагерцового стимулированного излучения с помощью одноосной деформации кристалла кремния, легированного мелкими донорами висмута в случае внутрицентрового оптического возбуждения. Экспериментально показана частотная перестройка двух линий излучения донора висмута в случае одноосной деформации вдоль кристаллографического направления [001]. Вычислены сечения усиления вынужденного комбинационного рассеяния света для одноосно-деформированного кремния, легированного висмутом.

Ключевые слова: кремний, одноосная деформация, инверсия, терагерцовое стимулированное излучение, вынужденное комбинационное рассеяние.

DOI: 10.21883/FTP.2020.08.49632.09

1. Введение

В последние годы достигнут значительный прогресс в развитии полупроводниковых источников излучения терагерцового диапазона частот [1–3]. Тем не менее интерес к созданию источников когерентного излучения на основе кремния сохраняется [4]. В данной работе исследуется влияние одноосной деформации на терагерцовое стимулированное излучение в кремнии, легированном донорами, при внутрицентровом возбуждении. В качестве активной примеси был выбран висмут (Bi), имеющий энергию ионизации ~ 71 мэВ и активный рамановский переход с энергией ~ 40 мэВ [4,5]. Как известно, стоков сдвиг для мелких доноров в кремнии определяется разностью энергий между состояниями $1s(A_1)$ и $1s(E)$ [6]. Ранее было показано, что оптическое возбуждение доноров V группы в кремнии при низких температурах (ниже 30 К) может, в зависимости от кванта возбуждения, приводить к возникновению стимулированного излучения в рамках двух механизмов: внутрицентральной инверсии населенности и внутрицентрового вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) [4,7,8]. В случае фотоионизации Bi рабочими переходами инверсионного механизма являются $2p_{\pm} \rightarrow 1s(T_2)$, $2p_{\pm} \rightarrow 1s(E)$. Инверсия населенности формируется благодаря специфическому характеру ре-

лаксации возбужденных состояний висмута, при котором состояния $1s(T_2)$, $1s(E)$ оказываются относительно незаселенными ввиду быстрого „оголения“ состояния $2p_0$ за счет взаимодействия с междолинными оптическими фононами f -ТО. В случае внутрицентрового возбуждения наблюдается вынужденное комбинационное рассеяние на переходе $1s(A_1) - 1s(E)$ в диапазоне квантов накачки, ограниченных снизу энергией перехода $1s(A_1) - 2p_0$, а сверху $1s(A_1) - 3p_0$ [4]. При этом в случае резонансной накачки могут реализоваться как инверсионный механизм, так и механизм ВКР, и будет наблюдаться конкуренция этих механизмов [5]. Рамановская активность на переходе $1s(A_1) - 1s(E)$ обусловлена волновыми функциями $1s$ -состояний, обладающими четностью относительно замены k_i на $-k_i$, где i — это кристаллографическое направление вдоль оси долины зоны проводимости кремния. С другой стороны, волновые функции триплетного состояния $1s(T_2)$ — нечетные, и переход $1s(A_1) - 1s(T_2)$ в донорах кремния не является рамановски активным. Одноосная деформация кристалла приводит к расщеплению состояния $1s(E)$ на две компоненты — $1s(B_1)$ и $1s(A_1^{\text{upper}})$, а значит, и к наличию в системе (в определенном диапазоне деформаций для определенного направления) двух активных рамановских переходов (рис. 1). Кроме того, как известно, при деформации изменяются и условия, определяющие инверсию населенности в Si:Bi [4].

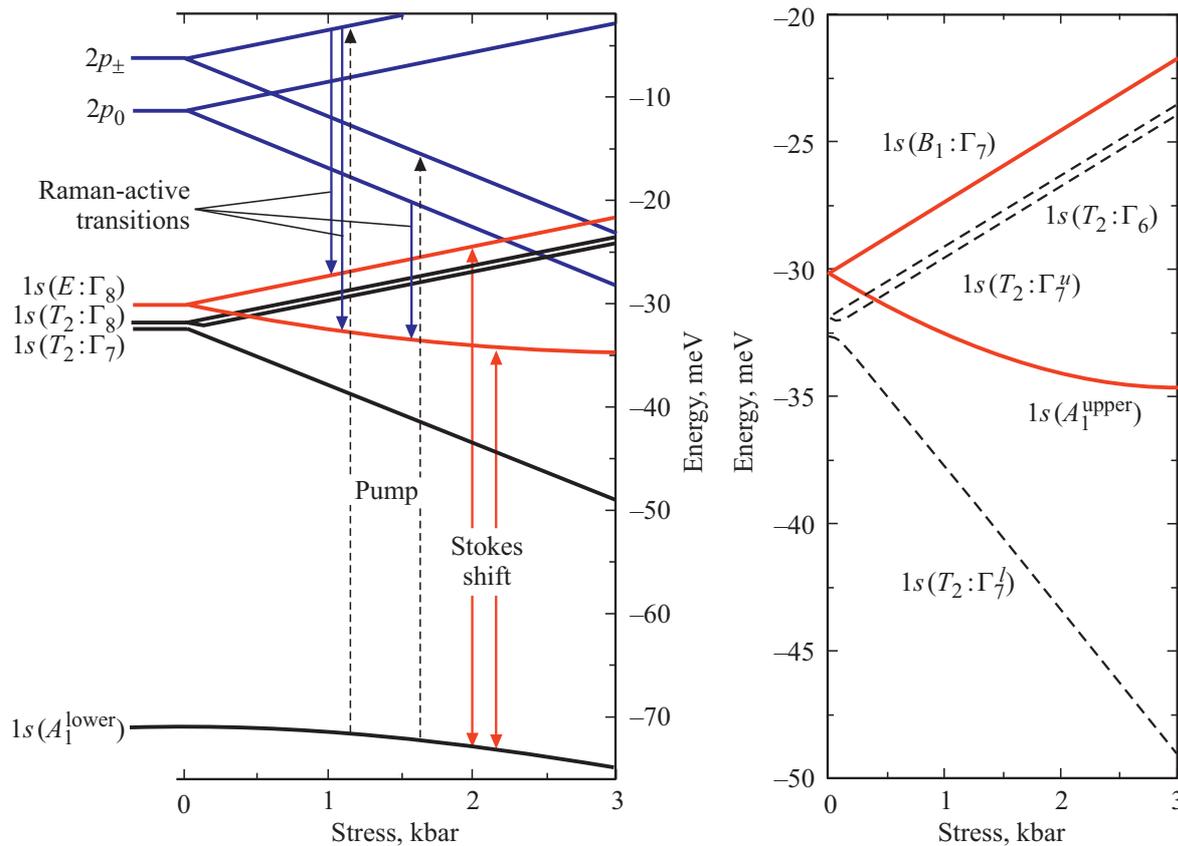


Рис. 1. Слева — расщепление уровней энергии донора висмута в кремнии под действием одноосной деформации вдоль кристаллографического направления [001]; стрелки вниз показывают квант излучения в случае резонансной накачки состояний $2p_{\pm}$ донора, стрелки вверх — кванты возбуждения; двунаправленные стрелки показывают стоксовы сдвиги, изменение вызвано расщеплением и взаимным сдвигом компонент $1s(E)$ и состояния $1s(A_1)$; положение уровней рассчитано в соответствии с работой [8], нулевое значение энергии соответствует так называемому центру „масс“ долин и совпадает с дном зоны проводимости в отсутствие давления. Справа — участок спектра, соответствующий возбужденным состояниям $1s$.

2. Эксперимент

Легирование исходного кремния, получаемого бестигельной зонной плавкой, проводилось методом выращивания с пьедестала [9]. Концентрация висмута в кристалле составляла $N_D \approx 3 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$. Образцы были вырезаны в форме прямоугольного параллелепипеда с размерами $(7 \times 5) \times (2-3) \text{ мм}$, с длинной стороной вдоль направления [001] и „оптическим“ качеством полировки граней для формирования высокодобротного резонатора. Образцы Si:Bi характеризовались путем измерения примесного поглощения при низких температурах ($\sim 5 \text{ K}$) с использованием фурье-спектрометра (Bruker Vertex 80v) со спектральным разрешением 0.1 см^{-1} . Эксперимент по наблюдению лазерного эффекта проводился с использованием пользовательской станции лазера на свободных электронах (ЛСЭ) FELIX (Radboud University, Nijmegen, The Netherlands). Накачка представляла собой макроимпульсы длительностью 10 мкс, следующие с частотой 10 Гц. Каждый макроимпульс состоит из микроимпульсов длительностью $\sim 10 \text{ пс}$, разделенных временным интервалом 1 нс. Оцениваемая максимальная

интенсивность микроимпульса в месте нахождения образца не превышала 0.5 МВт/см^2 (энергия макроимпульса 50 мДж). Импульсный характер излучения накачки предполагает, что время жизни фотона в резонаторе по порядку величины не меньше периода повторения микроимпульсов возбуждения. Данное условие достаточно хорошо выполняется для используемых образцов: как показали предыдущие эксперименты, время жизни фотона в резонаторе составляет величину $\sim 10 \text{ нс}$ [10]. Специальная вставка, содержащая исследуемый образец и позволяющая приложение давления [11], погружалась в транспортный гелиевый сосуд Дьюара. Величину давления рассчитывали исходя из знания рычажного соотношения, веса груза и площади торца образца. Ввод излучения накачки и вывод излучения образца осуществляли с помощью металлического волновода, имеющего внутренний диаметр 10 мм. Спектр излучения измерялся с помощью фурье-спектрометра со спектральным разрешением до 0.5 см^{-1} и сопряженного с фотодетектором Ge:Ga (полоса чувствительности с учетом фильтра на основе кристаллического кварца составляла 40–120 мкм). Спектр возбуждения (сигнал

германиевого детектора в зависимости от кванта возбуждения) записывался с использованием программного обеспечения пользовательской станции ЛСЭ FELIX.

3. Результаты и обсуждение

Проведенные эксперименты позволили обнаружить терагерцовое (ТГц) излучение из Si:Bi, имеющее пороговую зависимость от интенсивности накачки, что подтверждает его стимулированный характер. Анализ полученных экспериментальных данных позволил выделить в спектре стимулированного излучения висмута в кремнии вклады, имеющие различную зависимость от величины давления, приложенного вдоль направления [001]. В отсутствие деформации спектр возбуждения соответствует переходам в разрешенные состояния из основного состояния, а спектр излучения соответствует переходам $2p-1s(E)$, при этом наибольшей интенсив-

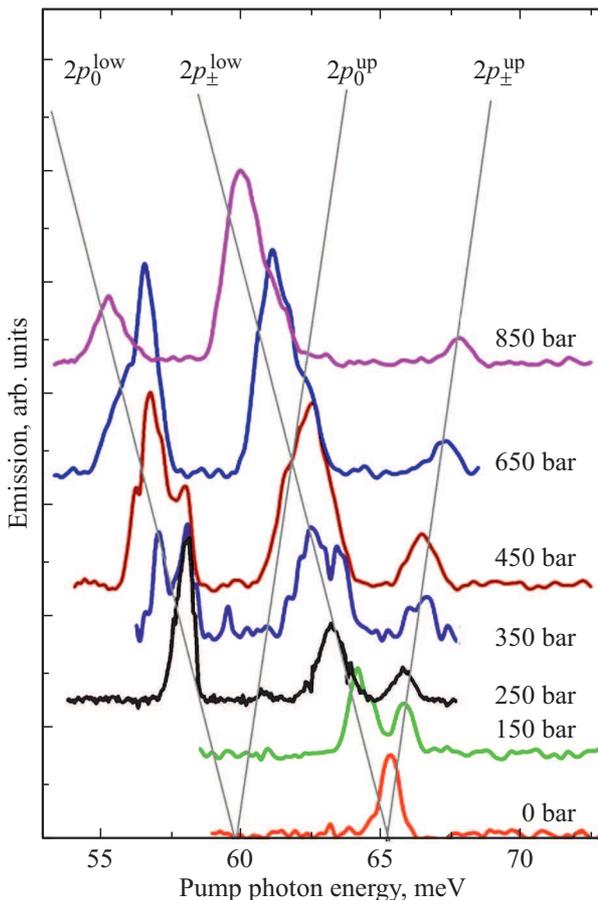


Рис. 2. Зависимость выходной интенсивности Si:Bi от энергии кванта возбуждения (частоты) для нескольких величин давления вдоль направления [001]. Интенсивность излучения накачки $\sim 0.5 \text{ МВт/см}^2$ в микроимпульсе на входе криогенной вставки, температура образца $\sim 4.2 \text{ К}$. Положение максимумов излучения соответствует энергиям переходов из основного состояния в верхние (up) и нижние (low) компоненты уровней $2p_0$ и $2p_{\pm}$.

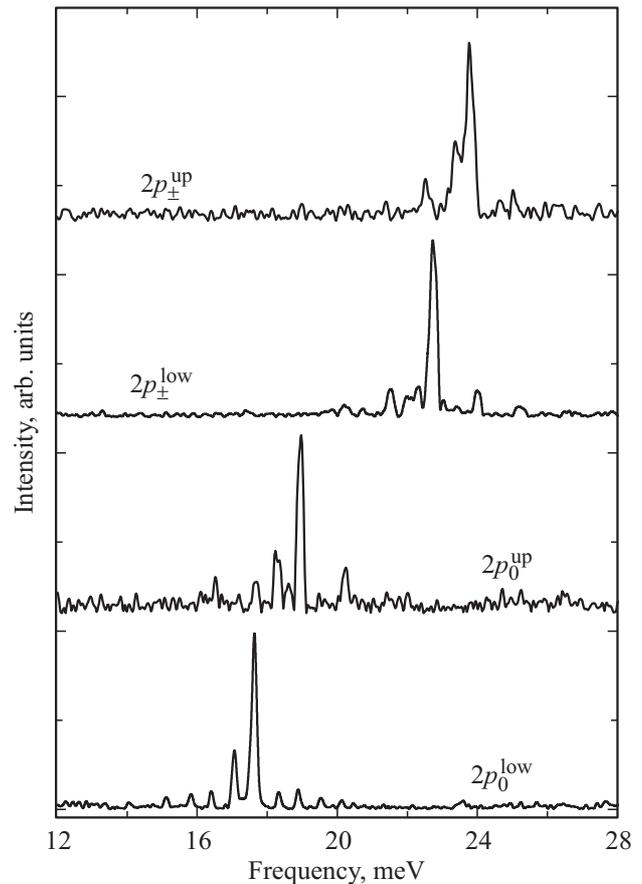


Рис. 3. Спектры стимулированного излучения Si:Bi, соответствующие случаю одноосного давления 250 бар и резонансному возбуждению верхних (up) и нижних (low) компонент уровней $2p_0$, $2p_{\pm}$ (см. рис. 2). Интенсивность излучения накачки $\sim 0.5 \text{ МВт/см}^2$ в микроимпульсе на входе криогенной вставки. Температура образца 4.2 К.

ностью обладает линия, связанная с возбуждением $2p_{\pm}$ (рис. 2).

Все приведенные далее данные касаются максимальной интенсивности возбуждения $\sim 0.5 \text{ МВт/см}^2$. Каждая линия обладает своей пороговой интенсивностью, зависящей от величины давления. Более подробный количественный анализ пороговых зависимостей затруднен ввиду неизвестной степени деполяризации излучения накачки в подводящем тракте. Вообще говоря, в такой системе возможно наблюдение ВКР в диапазоне квантов накачки 59–65 мэВ (19–21 мкм) [5]. Отсутствие более широкого спектра возбуждения в проведенных экспериментах вызвано относительно небольшой мощностью возбуждения и потерями в тракте. Одноосная деформация приводит к расщеплению линии $2p_{\pm}$ на две компоненты, что выражается при малых давлениях в появлении аналогичных компонент в спектре возбуждения (рис. 2). При давлении > 200 бар в спектре возбуждения обнаружены резонансы, соответствующие переходам в компоненты состояния $2p_0$, а в спектре выходного излучения — внутрицентровые переходы $2p_0-1s(A_1^{\text{upper}})$.

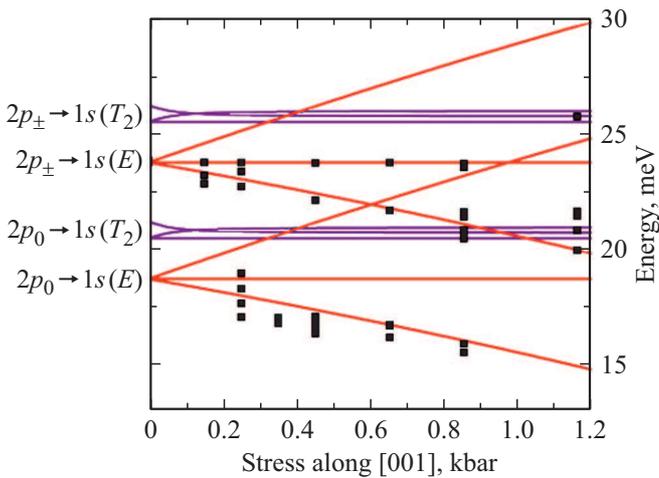


Рис. 4. Зависимость частоты выходного излучения Si:Bi от величины давления вдоль оси кристалла [001]. Точки соответствуют максимумам спектральных линий излучения, расчетная зависимость энергии переходов показана сплошными линиями.

В качестве иллюстрации на рис. 3 приведены спектры стимулированного излучения Si:Bi, соответствующие случаю одноосного давления 250 бар и резонансному возбуждению верхних (up) и нижних (low) компонент уровней $2p_0$, $2p_{\pm}$. Аналогичные линии получены и при накачке компонент $2p_{\pm}$ (рис. 3). На рис. 4 представлены результаты измерений спектров и сравнение с рассчитанными энергиями переходов в Si:Bi. Как следует из полученных экспериментальных данных, в спектрах излучения, как правило, присутствуют частоты, соответствующие переходам в состояния $1s(A_1^{\text{upper}})$ в случае возбуждения нижних компонент $2p$ -состояний и $1s(B_1)$ в случае возбуждения верхних компонент $2p$ -состояний. Отсутствие вкладов от переходов из верхних компонент $2p$ -состояний в $1s(A_1^{\text{upper}})$ можно связать с конкуренцией со стороны перехода в $1s(B_1)$, имеющего большее сечение перехода. Стоит отметить также отсутствие линий переходов в компоненты состояний $1s(T_2)$. Данное обстоятельство связано с тем, что эти переходы могут „включиться“ только в случае изменения междолинной симметрии волновых функций, что возможно исключительно при междолинном рассеянии. Это в свою очередь приводит к запрету не только эффекта ВКР с участием этих уровней, но также лазерной генерации инверсионного типа в случае резонансного возбуждения состояний $2p$.

В проведенных экспериментах минимальное значение частоты выходного излучения составило величину ~ 15 мэВ (120 см^{-1}). С одной стороны, теоретически величина энергии переходов $2p-1s(A_1^{\text{upper}})$ в деформированном кремнии может изменяться в довольно широких пределах, однако необходимо также учитывать величину матричного элемента перехода, который должен снижаться при увеличении давления. Для учета этого обстоятельства были проведены расчеты сечений в случае резонансного возбуждения (рис. 5). Видно,

что при давлениях ~ 1 кбар сечения усиления ВКР могут падать в 2–5 раз, в зависимости от конкретного перехода. Проведены расчеты сечения усиления ВКР на электронных состояниях донора висмута в кремнии в зависимости от частоты излучения накачки при одноосной деформации кристалла вдоль направления [100]. Вычисление проводилось в рамках второго порядка теории возмущений [12,13], в котором рамановская сумма была ограничена 14 слагаемыми, соответствующими оптическим электродипольным переходам с заметными значениями матричных элементов. Полагалось, что рамановский переход осуществляется между основным состоянием донорного центра $1s(A_1^{\text{lower}})$ и возбужденным $1s(A_1^{\text{upper}})$, поэтому практическое значение при суммировании имеют переходы между одним из указанных состояний и нечетными состояниями донора висмута:

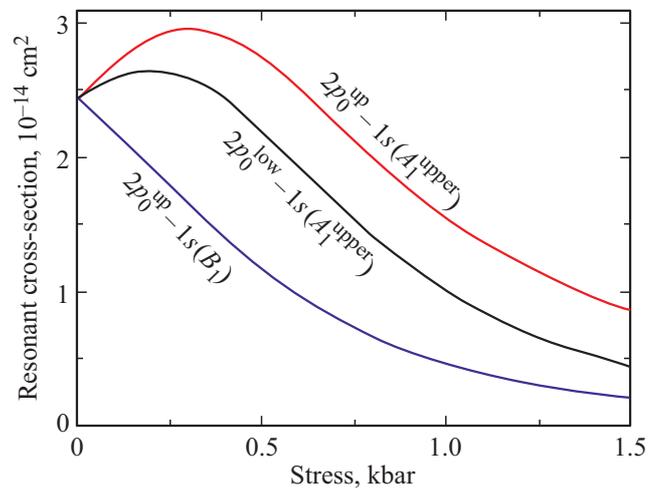


Рис. 5. Зависимость сечения резонансного ВКР для верхних (up) и нижних (low) компонент уровня $2p_0$ в зависимости от величины давления вдоль оси кристалла [001] при мощности возбуждения 0.2 МВт/см^2 .

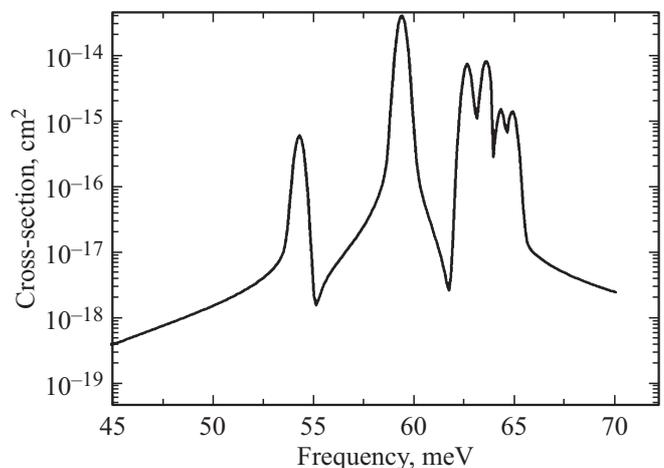


Рис. 6. Зависимость сечения ВКР от частоты возбуждения для величины неоднородного уширения 0.8 мэВ при давлении 1 кбар и мощности возбуждения 0.2 МВт/см^2 .

$2p_0, 2p_{\pm}, 3p_0, 4p_0, 3p_{\pm}, 5p_0, 4p_{\pm}, 4f_{\pm}, 5f_0, 5p_{\pm}, 5f_{\pm}, 6p_{\pm}, 6f_{\pm}, 6h_{\pm}$. Переходы в другие состояния имеют слишком малую величину матричного элемента электродипольного перехода. Значения матричных элементов были взяты из работы [14].

Конечное время жизни возбужденных состояний было учтено введением мнимой части к их энергии. Такой подход позволяет рассчитывать сечение ВКР как при резонансном возбуждении, так и для случая, когда энергия кванта возбуждения не соответствует переходу ни в одно реальное состояние донора. В рамках используемой модели показано, что зависимость сечения ВКР от частоты излучения накачки имеет вид немонотонной кривой с сильными выбросами в окрестности резонансов с реальными переходами в донорах (рис. 6). Было учтено неоднородное уширение линий примесных переходов введением флуктуационной поправки к энергии основного состояния, по которой осуществлялось усреднение вычисленного сечения в предположении, что разброс энергий основных состояний различных примесных центров подчиняется гауссовому закону распределения. Учет неоднородного уширения мало изменяет величину сечения резонансного ВКР при возбуждении в состоянии $2p_0$ ввиду быстрой релаксации уровня, но уменьшает его величину при возбуждении в состоянии $2p_{\pm}$ приблизительно на порядок.

Как уже отмечалось, в проведенных экспериментах переходы в $1s(T_2)$ не наблюдаются (по крайней мере среди сильных линий в спектре излучения). Данное обстоятельство связано не только с уширением уровней из-за неоднородности приложенного давления, что снижает эффективность возбуждения, но также существованием диапазона давлений, при которых существует эффективное взаимодействие с междолинными фононами. Оба эти обстоятельства должны приводить к более сильному подавлению инверсионного механизма генерации. Ранее проведенные эксперименты при фотоионизации донора показали, что для направления одноосной деформации вдоль [001] лазерная генерация отсутствует в диапазоне 1–2 кбар [15]. В принципе можно предположить, что переходы в ВКР активные компоненты уровня $1s(E)$ могли бы развиваться в рамках инверсионного механизма. Однако учет потерь на переходах в зону проводимости приводит к выводу, что такое развитие событий невозможно. Действительно, при неоднородном уширении линий поглощения и излучения баланс поглощение–усиление смещается в сторону поглощения. Как известно, этот фактор не позволяет увеличивать концентрацию активной примеси в кремнии, так как увеличение концентрации приводит к снижению сечения для внутрицентровых переходов и не влияет (практически) на сечение фотоионизации возбужденного состояния. Напротив, виртуальный характер перехода ВКР, когда возбужденный уровень не населен в процессе генерации, позволяет иметь в среде более широкие линии переходов, хотя это и приводит к уменьшению сечения.

4. Заключение

В работе исследовано влияние одноосного давления на терагерцовую лазерную генерацию в кремнии, легированном висмутом, при оптическом внутрицентровом возбуждении. Показано, что одноосное давление приводит к изменению характеристик стимулированного излучения. В частности, получена перестройка линии излучения на переходах $2p_0-1s(A_1^{\text{upper}})$ и $2p_{\pm}-1s(A_1^{\text{upper}})$, что невозможно получить при фотоионизации донора, так как в последнем случае реализуется инверсионный режим генерации на переходах $2p_0-1s(T_2)$, $2p_{\pm}-1s(T_2)$, энергия которых практически не изменяется, либо лазерная генерация вообще отсутствует по причине отсутствия инверсии при определенных величинах давления. В случае внутрицентрового возбуждения значительной эффективностью обладает механизм резонансного вынужденного комбинационного рассеяния, который оказывается более устойчивым к неоднородному уширению уровней и коротким временам релаксации верхних уровней.

Финансирование работы

Работа поддержана в рамках проекта Российского фонда фундаментальных исследований (19-02-00979) и совместного российско-немецкого проекта (DFG No. 389056032 и 18-502-12077-ННИО). Жукавин, Ковалевский и Павлов благодарят EU Calipso Plus Program за поддержку визита в FELIX Laboratory. Сотрудники DLR подтверждают, что работа проведена по контракту.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] M. Rösch, G. Scalari, M. Beck, J. Faist. *Nature Photonics*, **9**, 42 (2015).
- [2] C.G. Derntl, G. Scalari, D. Bachmann, M. Beck, J. Faist, K. Unterrainer, J. Darmo. *Appl. Phys. Lett.*, **113**, 181102 (2018).
- [3] Q. Lu, F. Wang, D. Wu, S. Slivken, M. Razeghi. *Nature Commun.*, **10**, 2403 (2019).
- [4] S.G. Pavlov, R.Kh. Zhukavin, V.N. Shastin, H.-W. Hübers. *Phys. Status Solidi B*, **250**, 9 (2013).
- [5] S.G. Pavlov, N. Deßmann, B. Redlich, A.F.G. van der Meer, N.V. Abrosimov, H. Riemann, R.Kh. Zhukavin, V.N. Shastin, H.-W. Hübers. *Phys. Rev. X*, **8**, 041003 (2018).
- [6] G.B. Wright, A. Mooradian. *Phys. Rev. Lett.*, **18**, 608 (1967).
- [7] В.В. Цыпленков, Р.Х. Жукавин, В.Н. Шастин. *ФТП*, **48**, 1044 (2014).
- [8] D.K. Wilson, G. Feher. *Phys. Rev.*, **124**, 1068 (1961).
- [9] H. Riemann, N. Abrosimov, N. Nötzel. *ECS Trans.*, **3**, 53 (2006).
- [10] R.Kh. Zhukavin, V.N. Shastin, S.G. Pavlov, H.-W. Hübers, J.N. Hovenier, T.O. Klaassen, A.F.G. van der Meer. *J. Appl. Phys.*, **102**, 093104 (2007).

- [11] R.Kh. Zhukavin, V.V. Tsyplenkov, K.A. Kovalevsky, V.N. Shastin, S.G. Pavlov, U. Böttger, H.-W. Hübers, H. Riemann, N.V. Abrosimov, N. Nötzel. *Phys. Lett.*, **90**, 051101 (2007).
- [12] P. Clauws, J. Broeckx, E. Rotsaert, J. Vennik. *Phys. Rev. B*, **38**, 12377 (1988).
- [13] В.Б. Берестецкий, Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский. *Теоретическая физика. Т. IV. Квантовая электродинамика* (М., Наука, 1989) с. 255.
- [14] И.Р. Шен. *Принципы нелинейной оптики* (М., Наука, 1989) с. 148.
- [15] К.А. Ковалевский, Н.В. Абросимов, Р.Х. Жукавин, С.Г. Павлов, Г.-В. Хьюберс, В.В. Цыпленков, В.Н. Шасти́н. *Квант. электрон.*, **45** (2), 113 (2015).

Редактор Л.В. Шаронова

Frequency tuning of terahertz stimulated emission from shallow donors in uniaxially stressed Si:Bi under intracenter optical excitation

R.Kh. Zhukavin¹, K.A. Kovalevsky¹, S.G. Pavlov²,
N. Deßmann³, A. Pohl⁴, V.V. Tsyplenkov¹,
N.V. Abrosimov⁵, H. Riemann⁵,
H.-W. Hübers^{2,4}, V.N. Shastin¹

¹ Institute for Physics of Microstructures,
Russian Academy of Sciences,
603087 Nizhny Novgorod, Russia

² Institute of Optical Sensor Systems,
German Aerospace Center (DLR),
12489 Berlin, Germany

³ Radboud University Nijmegen, FELIX Laboratory,
6525 ED Nijmegen, The Netherlands

⁴ Department of Physics,
Humboldt-Universität zu Berlin,
12489 Berlin, Germany

⁵ Leibniz-Institut für Kristallzüchtung (IKZ),
12489 Berlin, Germany

Abstract The results of experimental and theoretical investigations dedicated to the uniaxial stress induced tuning of terahertz stimulated terahertz emission from silicon doped with bismuth under optical intracenter excitation. The frequency tuning of two emission lines from bismuth donor in silicon under uniaxial stress along [001] has been demonstrated in the experiments. The cross-sections of stimulated Raman scattering for uniaxially stressed silicon doped with bismuth donors have been calculated.