Письма в ЖЭТФ, том 101, вып. 2, с. 112 – 117 © 2015 г. 25 января

Спектральная зависимость анизотропной пикосекундной фотопроводимости в кубических полупроводниках

Ю. В. Малевич[1)], *Р. Адомавичюс, А. Кроткус, В. Пачебутас, В. Л. Малевич*[+*]

Center for Physical Sciences and Technology, 01108 Vilnius, Lithuania

[+]*Институт физики им. Степанова НАН Беларуси, 220072 Минск, Беларусь*

[*]*Университет информационных технологий, механики и оптики, 197101 С.-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 27 ноября 2014 г.

Методом “оптическое возбуждение – терагерцовое зондирование” исследована спектральная зависимость анизотропной пикосекундной фотопроводимости в кубическом полупроводнике InGaAs, возбуждаемом фемтосекундным лазерным излучением. Показано, что анизотропия фотопроводимости, обусловленная эффектом выстраивания фотовозбужденных носителей заряда по импульсам и зависимостью их подвижности от энергии, немонотонным образом зависит от энергии кванта возбуждающего оптического излучения и достигает максимальной величины при энергии возбуждающих фотонов вблизи порога перехода электронов в боковые долины.

DOI: 10.7868/S0370274X15020083

Как известно, правила отбора для прямых межзонных переходов приводят к анизотропии импульсного распределения электронов и дырок, возбуждаемых поляризованным оптическим излучением в полупроводниках [1, 2]. Это явление, известное как оптическое выстраивание электронов по импульсам, проявляется в поляризации горячей фотолюминесценции, а также приводит к поверхностному фотогальваническому эффекту [3], который состоит в возникновении компоненты фототока, параллельной освещаемой излучением поверхности полупроводника. В работе [4] было показано, что оптическое выстраивание фотовозбужденных электронов по импульсам и зависимость времени их импульсной релаксации от энергии могут приводить к анизотропии фотопроводимости в изотропных и кубических средах, для которых электропроводность и линейные оптические свойства изотропны. (Анизотропия фотопроводимости и конкретные механизмы ее возникновения в изотропных средах впервые рассматривались в работах [5, 6].)

Эффект анизотропной фотопроводимости проявляется в зависимости фототока от поляризации возбуждающего оптического излучения и возникновении поперечной (перпендикулярной тянущему полю) компоненты фототока (или поперечной фотоЭДС в разомкнутом образце). Анизотропию фототока можно объяснить в рамках феноменологического подхода, если рассматривать фотопроводимость как нелинейный эффект третьего порядка и характеризовать ее тензором нелинейной проводимости [7]. Для кубических полупроводников, возбуждаемых линейно поляризованным излучением, фототок $\mathbf{j}$ в кристаллографической системе координат можно представить в виде

$$\mathbf{j} = \alpha\mathbf{F}E^2+\beta\mathbf{E}(\mathbf{FE})+\gamma(F_xE_x^2\hat{\mathbf{x}}+F_yE_y^2\hat{\mathbf{y}}+F_zE_z^2\hat{\mathbf{z}}), \quad (1)$$

где $\mathbf{E}$ – амплитуда электрического поля оптического излучения, $\mathbf{F}$ – напряженность тянущего электрического поля, $\hat{\mathbf{x}}$, $\hat{\mathbf{y}}$ и $\hat{\mathbf{z}}$ – орты кристаллографической системы координат, коэффициенты α, β и γ выражаются через неисчезающие компоненты тензора нелинейной проводимости [7]. Из выражения (1) следует, что направление фототока зависит от ориентации вектора поляризации оптического излучения относительно тянущего электрического поля и кристаллографических осей полупроводника. В изотропной среде коэффициент γ обращается в нуль. Однако и в этом случае направления векторов $\mathbf{j}$ и $\mathbf{F}$, вообще говоря, не совпадают.

В условиях стационарного оптического возбуждения анизотропия фотопроводимости практически не проявляется, поскольку эффект пропорционален малому параметру, который определяется отношением времени релаксации анизотропии функции распределения фотовозбужденных электронов к времени их жизни в зоне. Однако этот эффект может быть более заметным в условиях нестационарной фотопроводи-

[1)]e-mail: malevich@pfi.lt

мости, когда полупроводник возбуждается фемтосекундными лазерными импульсами и пиковое значение фототока достигается на временах, сравнимых с временем затухания анизотропной части функции распределения фотоэлектронов.

Эффект анизотропной пикосекундной фотопроводимости, по-видимому, играет существенную роль в генерации терагерцового (ТГц) электромагнитного излучения в полупроводниках, возбуждаемых фемтосекундными лазерными импульсами [8]. В полупроводниках с поверхностным изгибом зон анизотропия фотопроводимости приводит к возникновению латеральной компоненты фототока, параллельной облучаемой поверхности. Недавно было показано [9], что вклад этой компоненты фототока в генерацию ТГц-излучения может быть сравним со вкладом компоненты фототока, перпендикулярной поверхности полупроводника, и даже превышать его. Зависимость латерального фототока от ориентации вектора поляризации возбуждающего фемтосекундного излучения относительно кристаллографических осей полупроводника объясняет также экспериментально наблюдаемую азимутальную анизотропию эффекта генерации ТГц-импульсов в узкозонных полупроводниках [10, 11], которую обычно связывают с эффектом нелинейного оптического выпрямления.

В работе [12] методом Монте-Карло был рассчитан фототок, возбуждаемый фемтосекундным оптическим импульсом в полупроводниках InAs и InGaAs в постоянном электрическом поле. Оказалось, что при возбуждении полупроводника излучением с энергией фотонов вблизи порога перехода электронов в боковые долины зоны проводимости (для полупроводников InAs и InGaAs это примерно соответствует длине волны излучения титан-сапфирового лазера) поперечная компонента фототока в первые 50–100 фс после возбуждения может превышать компоненту фототока вдоль электрического поля. Анизотропную фотопроводимость можно экспериментально исследовать методом “оптическое возбуждение – терагерцовое зондирование”. Данный метод основан на измерении оптически индуцированного изменения пропускания (и/или отражения) зондирующего ТГц-излучения через исследуемый образец в зависимости от времени задержки между возбуждающим оптическим и ТГц-импульсом. Основной вклад в изменение пропускания ТГц зондирующего излучения дает друдевское поглощение на фотовозбужденных электронах и дырках, которое определяется фототоком, индуцируемым электрическим полем ТГц-импульса. Вклад в поглощение, естественно, будет давать только компонента фототока, параллельная ТГц электрическому полю. Зависимость фототока от ориентации ТГц электрического поля относительно кристаллографических осей полупроводника и направления поляризации оптического излучения, очевидно, приведет к анизотропии пропускания зондирующего ТГц-излучения. Данный эффект экспериментально наблюдался в образце InGaAs, возбуждаемом фемтосекундным лазерным излучением на длине волны 800 нм [12].

В настоящей работе методом “оптическое возбуждение – терагерцовое зондирование” [13] исследуется спектральная зависимость анизотропии фотопроводимости в полупроводнике InGaAs, возбуждаемом фемтосекундным лазерным излучением. Экспериментально установлено, что степень анизотропии фотопроводимости немонотонным образом зависит от энергии возбуждающих фотонов. Результаты Монте-Карло-моделирования взаимодействия ТГц-импульсов с фотовозбужденной электрон-дырочной плазмой достаточно хорошо согласуются с полученными экспериментальными данными.

Исследуемый образец представлял собой монокристаллическую пленку полупроводника n-$In_{0.53}Ga_{0.47}As$ толщиной 1.08 мкм с ориентацией (001), выращенную методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложке InP. Излучение фемтосекундного лазера (Pharos, Light Conversion) с длиной волны 1.03 мкм разделялось на три пучка. Два из них использовались для возбуждения ТГц-излучателя и стробирования фотопроводящей антенны на основе полупроводника GaBiAs (Teravil), являющейся детектором ТГц-излучения. Третий, наиболее мощный пучок лазерного излучения накачивал параметрический преобразователь (Orpheus, Light Conversion), который являлся источником перестраиваемого по длине волны возбуждающего фемтосекундного излучения, используемого для генерации неравновесных электрон-дырочных пар в полупроводнике. Возбуждающие фемтосекундные импульсы следовали с частотой 200 кГц, а их длительность по полувысоте составляла около 150 фс. Излучателем ТГц-импульсов являлась полупроводниковая пластина p-InAs (111). Использование этого типа излучателя вместо обычно применяемых фотопроводящих антенн позволило сформировать более качественный ТГц-пучок. Перестраиваемое по частоте фемтосекундное излучение от параметрического преобразователя со средней мощностью 200 мВт фокусировалось на исследуемый образец в пятно диаметром 2 мм. Для изменения направления поляризации возбуждающего излучения относительно поляризации ТГц-излучения применялась полуволновая пластинка. Фокусировка падающего на образец и прошедшего ТГц-излучения осуществлялась двумя тефлоновыми линзами, помещенными перед исследуемым образцом и за ним. Измерялось оптически индуцированное изменение амплитуды прошедшего через образец ТГц-импульса в зависимости от времени его задержки относительно фемтосекундного возбуждающего импульса. Длина волны возбуждающего излучения изменялась в диапазоне 0.69–1.0 мкм. Измерения проводились при комнатной температуре для двух направлений вектора поляризации возбуждающего оптического излучения, параллельно и перпендикулярно электрическому полю ТГц-импульса.

Толщина слоя фотовозбужденной электрон-дырочной плазмы определяется длиной поглощения оптического излучения, которая много меньше длины волны ТГц-излучения. Это позволяет рассматривать слой фотовозбужденной плазмы как бесконечно тонкий и для оптически индуцированного изменения прошедшего ТГц-поля ΔF получить выражение $\Delta F = -4\pi I/c(n+1)$, где c – скорость света в вакууме, n – показатель преломления подложки в ТГц-области спектра, I – компонента поверхностного фототока, параллельная электрическому полю ТГц-импульса. Здесь следует отметить, что поверхностный фототок определяется эффективным электрическим полем, которое, вообще говоря, не совпадает с падающим полем ТГц-импульса. Однако учитывая, что падающее ТГц-поле отличается от эффективного на малую величину, пропорциональную поверхностному фототоку, разницей этих полей можно пренебречь.

Поверхностный фототок, индуцированный ТГц-полем, рассчитывался методом Монте-Карло. Спектр электронов в боковых L- и X-долинах зоны проводимости описывался на основе изотропной кейновской модели. Рассеяние носителей заряда на акустических, оптических (полярных и деформационных) и междолинных (для электронов) фононах рассматривалось в изотропном приближении. Законы дисперсии и волновые функции электронов в центральной долине зоны проводимости и дырок в трех валентных подзонах, а также матричные элементы оператора импульса для прямых межзонных переходов рассчитывались численно с использованием восьмизонного гамильтониана-матрицы в представлении Латтинжера–Кона. Такое приближение позволяет учесть реальную кубическую симметрию кристалла, которая приводит к гофрировке зон, а также эффекты межзонного взаимодействия, играющие важную роль в узкозонных полупроводниках. Рассчитанные вероятности оптических переходов использовались далее при вычислении начальных функций распределения электронов и дырок по импульсам. Расчеты показывают, что функция распределения фотоэлектронов, возбуждаемых в состояния зоны проводимости с энергиями, сравнимыми с шириной запрещенной зоны полупроводника или превышающими ее, существенно отличается от распределения электронов, генерируемых вблизи дна зоны проводимости. В частности, электроны, возбуждаемые из подзон тяжелых и легких дырок высоко в зону проводимости, выстраиваются по импульсу преимущественно в плоскости, перпендикулярной вектору поляризации излучения.

Использовался алгоритм моделирования Монте-Карло, при котором количество частиц в ансамбле оставалось постоянным. Появление реальных электронов и дырок в зонах в процессе оптического возбуждения учитывалось путем изменения эффективного заряда моделируемых частиц. Электрическое поле зондирующего ТГц-импульса F аппроксимировалось функцией $F(t) \sim t^2(1-5t/3)\exp(-5t)$ (где t – время в пс), которая достаточно хорошо описывает его реальную форму.

Расчеты показывают (рис. 1), что компонента поверхностного фототока I, параллельная ТГц элек-

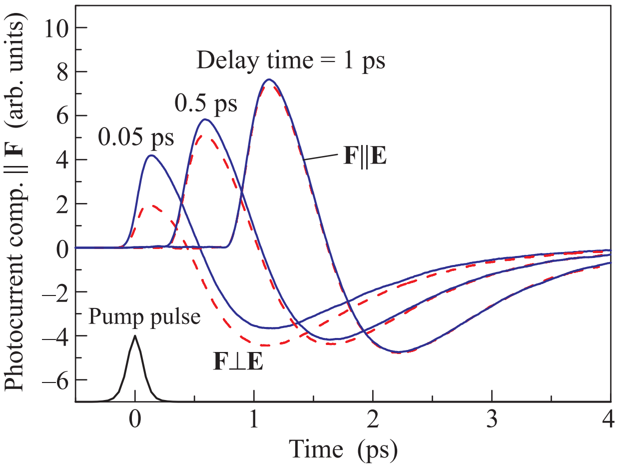

Рис. 1. Временные зависимости компоненты поверхностного фототока I, индуцируемого ТГц электрическим полем в фотовозбужденном InGaAs, рассчитанные для разных времен запаздывания ТГц-импульса относительно оптического импульса для двух направлений его поляризации. Время запаздывания определяется по положениям максимумов терагерцового и оптического импульсов. Возбуждающее оптическое излучение поляризовано в направлении [110]

трическому полю, зависит от направления вектора поляризации оптического излучения. Непосредственно после окончания возбуждающего импульса (см. кривые на рис. 1 для времени задержки 0.05 пс) разность фототоков для параллельной и перпендикулярной ориентаций вектора поляризации оптического излучения относительно ТГц-поля оказывается сравнимой с величиной самого фототока в данный момент. С увеличением времени запаздывания ТГц-импульса относительно оптического разность фототоков уменьшается с характерным временем релаксации порядка 1 пс. Небольшое, порядка 100 фс, запаздывание фототока относительно электрического поля ТГц-импульса, наблюдаемое на рис. 1, обусловлено конечным временем релаксации электронов. Из расчетов также следует, что с увеличением времени запаздывания ТГц-импульса относительно оптического происходит рост амплитуды фототока. Такое поведение фототока естественно связать с увеличением подвижности фотовозбужденных электронов по мере их релаксации на дно зоны проводимости.

Физический механизм анизотропии проще всего понять, рассмотрев баллистическую стадию переноса фотовозбужденных электронов в постоянном электрическом поле в зоне с непараболическим законом дисперсии. Рассмотрим пару фотоэлектронов с одинаковыми по модулю, но противоположно направленными импульсами. Под действием электрического поля **F** энергия электрона, имеющего начальную компоненту импульса вдоль электрического поля, будет уменьшаться, тогда как фотоэлектрон с противоположным направлением импульса будет ускоряться и увеличивать свою энергию. Из-за эффекта непараболичности эффективная масса первого электрона будет уменьшаться, а второго – увеличиваться. На баллистической стадии переноса, т. е. в первые несколько сотен фемтосекунд после фотовозбуждения, вклад пары электронов в компоненту плотности фототока, параллельную полю **F**, будет определяться выражением

$$j = -e\left[(p_\| - eFt)/\,m(\varepsilon_{p_\perp, p_\| - eFt}) - \right.$$
$$\left. - \ (p_\| + eFt)/\,m(\varepsilon_{p_\perp, p_\| + eFt})\right], \qquad (2)$$

где $m(\varepsilon_\mathbf{p})$ – эффективная масса электрона, зависящая от энергии $\varepsilon_\mathbf{p}$, $p_\|$ и $p_\perp$ – взятые по модулю параллельная и перпендикулярная электрическому полю компоненты начального импульса электрона в момент фотовозбуждения,. В линейном приближении по полю из выражения (2) получаем

$$J = \frac{2e^2Ft}{m}\left[1 - p_\| \frac{d\varepsilon_p}{dp_\|}\frac{d\ln m}{d\varepsilon_\mathbf{p}}\right]. \qquad (3)$$

Эффективная масса и производная от нее по энергии, входящие в выражение (3), берутся при начальной энергии электрона в момент возбуждения. Первое слагаемое в (3) не зависит от направления начального импульса фотовозбужденных электронов. Оно описывает обычный вклад в фототок, обусловленный асимметрией их распределения по импульсам, создаваемой электрическим полем **F**. Второе же слагаемое зависит от ориентации начального импульса фотоэлектрона и описывает вклад в фототок эффекта непараболичности, который приводит к нелинейной зависимости скорости электрона от импульса. Усреднение по импульсам с анизотропной функцией распределения фотовозбужденных электронов, очевидно, приведет к зависимости данного слагаемого от ориентации вектора поляризации возбуждающего излучения относительно тянущего электрического поля. На более поздней стадии, когда перенос фотовозбужденных носителей заряда определяется процессами рассеяния, вклад в анизотропию фототока будет давать также и зависимость скорости импульсной релаксации электронов от энергии.

На рис. 2 представлены типичные экспериментальные зависимости фотоиндуцированного изменения ТГц-пропускания ΔT от времени задержки между терагерцовым и оптическим импульсами. С увеличением времени задержки наблюдается уменьшение ТГц-пропускания. Это объясняется релаксацией фотовозбужденных электронов по энергии, которая приводит к увеличению их подвижности и росту фототока в ТГц электрическом поле (см. рис. 1). На представленном рисунке также отчетливо видно,

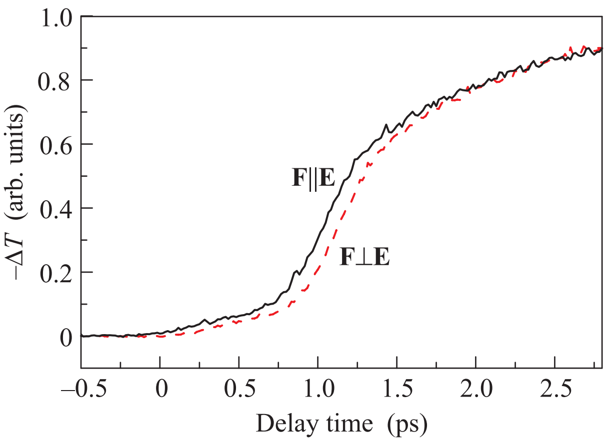

Рис. 2. Фотоиндуцированное изменение ТГц-пропускания ΔT в зависимости от времени задержки ТГц-импульса относительно оптического импульса, измеренное для двух направлений его поляризации. Длина волны возбуждающего излучения 780 нм

что в первые 2 пс после возбуждения изменение ТГц-пропускания зависит от ориентации вектора поляризации оптического излучения относительно электрического поля ТГц-импульса. Можно сделать вывод о том, что наблюдаемая поляризационная зависимость фотоиндуцированного изменения ТГц-пропускания обусловлена эффектом анизотропной фотопроводимости.

Согласно (3) анизотропная составляющая фотопроводимости является функцией начальной энергии фотовозбужденных электронов. Следовательно, она должна зависеть от энергии кванта возбуждающего излучения. Этот вывод иллюстрирует рис. 3, на котором представлены экспериментально измеренная и рассчитанная методом Монте-Карло зависимости анизотропии фотоиндуцированного изменения ТГц-пропускания InGaAs от длины волны возбуждающего фемтосекундного излучения. Из приведенных экспериментальных данных и результатов моделирования следует, что величина анизотропии достигает максимума при возбуждении на длине волны 780 нм, что примерно соответствует энергии фотонов 1.6 эВ. Излучение с такой длиной волны приводит к генерации в InGaAs электронов в центральной долине зоны проводимости с энергией вблизи порога их перехода в боковые долины. Поэтому

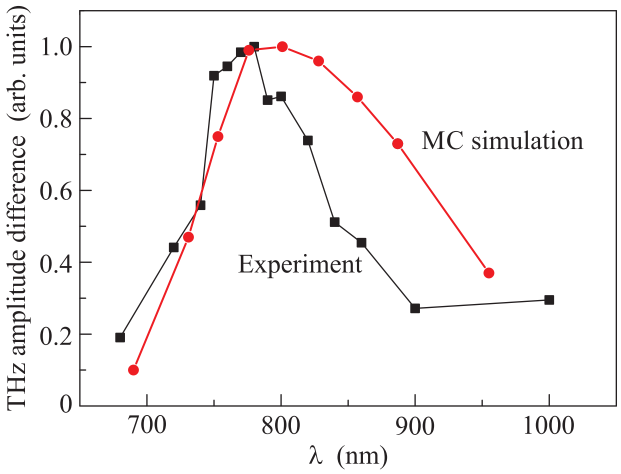

Рис. 3. Спектральная зависимость анизотропии изменения ТГц-пропускания InGaAs, возбуждаемого линейно поляризованным фемтосекундным излучением. По вертикальной оси отложена разность амплитуд прошедших через образец ТГц-импульсов, поляризованных параллельно и перпендикулярно электрическому полю возбуждающего оптического излучения. Средняя мощность возбуждающего излучения нормировалась таким образом, чтобы при изменении его длины волны поток фотонов оставался постоянным

естественно предположить, что наличие спектрального максимума в анизотропной фотопроводимости связано с междолинными переходами фотовозбужденных электронов. Действительно, фотоэлектроны, имеющие компоненту импульса вдоль электрического поля, замедляются и остаются в центральной долине с высокой подвижностью электронов. Электроны же с противоположным направлением импульса будут увеличивать свою энергию и интенсивно рассеиваться в боковые долины зоны проводимости с малой подвижностью. Следовательно, основной вклад в анизотропную часть фототока будут давать электроны центральной долины, движущиеся под острым углом к полю. Вклад этих электронов в анизотропную составляющую фотопроводимости приведет к уменьшению компоненты фототока вдоль ТГц-поля и, соответственно, к увеличению ТГц-пропускания. Данный эффект будет сильнее проявляться для фотоэлектронов, импульсы которых ориентированы вдоль ТГц-поля $\mathbf{F}$. Так как в нашем случае фотоэлектроны в основном ориентированы в плоскости, перпендикулярной вектору $\mathbf{E}$, это условие достигается для ориентации полей $\mathbf{F} \perp \mathbf{E}$ (см. рис. 2). Следует отметить, что гофрировка энергетических зон, связанная с кубической симметрией полупроводника, приведет к зависимости анизотропной фотопроводимости от ориентации вектора поляризации возбуждающего излучения относительно кристаллографических осей полупроводника.

В заключение отметим, что экспериментально измеренная ранее величина азимутальной анизотропии ТГц-сигнала, генерируемого поверхностью InAs при возбуждении фемтосекундным лазерным излучением, немонотонно зависит от длины волны возбуждающего излучения. Она достигает максимума при энергии фотонов 1.55 эВ [14], что примерно соответствует пороговой энергии переходов электронов в боковые L-долины зоны проводимости. Наблюдаемый спектральный максимум азимутальной анизотропии, вероятно, связан со вкладом в ТГц-генерацию латеральной компоненты фототока. Эта компонента обусловлена анизотропией фотопроводимости, которая также достигает максимума при пороговой энергии фотонов для междолинных переходов.

Таким образом, в результате моделирования Монте-Карло и экспериментальных исследований показано, что междолинные переходы фотовозбужденных электронов могут существенно влиять на анизотропию пикосекундной фотопроводимости в кубических полупроводниках, возбуждаемых сверхкороткими лазерными импульсами. Установлено, что анизотропия фотопроводимости достигает максимальной величины при возбуждении электронов излучением с энергией фотонов вблизи порога переходов фотоэлектронов в боковые долины зоны проводимости. Показано, что анизотропная фотопроводимость может существенно влиять на эффект генерации ТГц-импульсов поверхностью полупроводника.

---

1. В. Д. Дымников, М. И. Дьяконов, В. И. Перель, ЖЭТФ **71**, 2373 (1976).
2. Д. Н. Мирлин, в *Оптическая ориентация (Современные проблемы науки о конденсированных средах)*, под ред. Б. П. Захарчени, Ф. Майера, Наука, Л. (1989), с. 109.
3. В. Л. Альперович, В. И. Белиничер, В. Н. Новиков, А. С. Терехов, Письма в ЖЭТФ **31**, 581 (1980).
4. В. И. Белиничер, В. Н. Новиков, ФТП **15**, 1957 (1981).
5. Ю. В. Гуляев, Письма в ЖЭТФ **7**, 171 (1968).
6. Ю. С. Гальперн, Ш. М. Коган, ЖЭТФ **56**, 355 (1969).
7. В. Н. Генкин, П. М. Меднис, ЖЭТФ **54**, 1137 (1968).
8. Y.-Sh. Lee, *Principles of Terahertz Science and Technology*, Springer (2009).
9. V. L. Malevich, P. A. Ziaziulia, R. Adomavičius, A. Krotkus, and Y. V. Malevich, J. Appl. Phys. **112**, 073115 (2012).
10. R. Adomavičius, A. Urbanowicz, G. Molis, A. Krotkus, and E. Šatkovskis, Appl. Phys. Lett. **85**, 2463 (2004).
11. M. Reid, I. V. Gravetchi, and R. Fedosejevs, Phys. Rev. B **72**, 035201 (2005).
12. Y. V. Malevich, R. Adomavičius, A. Krotkus, and V. L. Malevich, J. Appl. Phys. **115**, 073103 (2014).
13. J. B. Baxter and C. A. Schmuttenmaer, in *Terahertz Spectroscopy: Principle and Applications*, ed. by S. L. Dexheimer, Taylor & Francis Group (2008), p. 73.
14. R. Adomavičius, G. Molis, A. Krotkus, and V. Sirutkaitis, Appl. Phys. Lett. **87**, 261101 (2005).