Письма в ЖЭТФ, том 109, вып. 12, с. 821 – 825 

# Стимулированное терагерцовое излучение в системе экситонов фотовозбужденного кремния

*А. О. Захарьин, А. В. Андрианов*[1]*, А. Г. Петров*

*Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе, 194021 С.-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 26 апреля 2019 г.
После переработки 26 апреля 2019 г.
Принята к публикации 7 мая 2019 г.

Обнаружено стимулированное терагерцовое излучение, обусловленное инверсией населенности между экситонными состояниями в кристаллах кремния при интенсивном межзонном фотовозбуждении. Спектр терагерцового усиления демонстрирует линии при 13.7 и 15.5 мэВ, значение коэффициента усиления на которых достигает 0.5 и 1 $см^{-1}$, соответственно. Линия при 13.7 мэВ обусловлена инверсией населенности между высоковозбужденными состояниями и основным состоянием свободных экситонов. Линию при 15.5 мэВ можно связать с инверсией населенности между двухэкситонным и биэкситонным состояниями. Значения коэффициента терагерцового усиления позволяет рассчитывать на возможность создания нового типа терагерцового лазера на переходах между состояниями свободных экситонов в кремнии в условиях межзонного фотовозбуждения.

DOI: 10.1134/S0370274X19120038

Известно, что при захвате неравновесных носителей заряда на притягивающие мелкие примесные центры в полупроводниках возникает терагерцовое (ТГц) электромагнитное излучение [1–3], обусловленное главным образом оптическими переходами между примесными уровнями. На основе этого явления может быть реализовано несколько схем источников ТГц излучения, включая ТГц лазеры [4, 5]. Недавно сообщалось об первом экспериментальном обнаружении ТГц излучения при связывании неравновесных электронов и дырок в свободные экситоны [6]. Эти эксперименты были проведены на кристаллах кремния при гелиевых температурах в условиях межзонного фотовозбуждения. В работе [7] было показано, что внутриэкситонные излучательные переходы определяют спектр ТГц фотолюминесценции (ФЛ) кремния как в условиях низких, так и высоких интенсивностей фотовозбуждения, существенно превышающих порог образования капель электронно-дырочной жидкости (ЭДЖ). Внутриэкситонное ТГц излучение в отличие от внутрицентрового не имеет тенденции к насыщению при высоких уровнях возбуждения [6], и поэтому оно может достигать высокой интенсивности при интенсивной накачке.

В ряде работ теоретически предсказывалась возможность инверсии населенности между уровнями свободных экситонов и, соответственно, ТГц лазерного излучения при интенсивном межзонном фотовозбуждении кристалла (см., например, [8, 9]). В работе [10] методом когерентной спектроскопии в варианте оптическая накачка – ТГц зонд (*optical pump-THz probe*) было зарегистрировано появление внутриэкситонной инверсии населенности в $Cu_2O$ при интенсивном межзонном фотовозбуждении. В экспериментах работы [10] наблюдалось отрицательное поглощение пробного ТГц излучения на переходах между уровнями свободных экситонов, что позволило авторам сделать вывод о достижении инверсии населенности между экситонными уровнями. Реальное же ТГц излучение, вызванное оптическими переходами между уровнями свободных экситонов с инвертированной заселенностью, в этих экспериментах не наблюдалось.

В настоящей работе мы сообщаем о прямом экспериментальном наблюдении стимулированной ТГц фотолюминесценции, обусловленной инверсией населенности в системе свободных экситонов при интенсивном межзонном фотовозбуждении.

Исследования проводились на кристаллах высокочистого кремния, выращенного методом зонной плавки и имеющего удельное сопротивление порядка 12 кОм · см (концентрация остаточных примесей $N_A$-$N_D$ не выше $10^{12}$ $см^{-3}$, основная остаточная примесь – бор). Исследуемым образцам была придана форма пластин ориентации (111) толщиной 0.5 мм и поперечными размерами $7 \times 7$ $мм^2$. Образцы обрабатывались с помощью алмазных паст, а далее травились в полирующем травителе СР-4. Исследуемый

[1]e-mail: alex.andrianov@mail.ioffe.ru

образец размещался в оптимизированном для ТГц измерений гелиевом оптическом криостате с регулировкой температуры. Образец был закреплен на массивном латунном держателе с помощью серебряной пасты и находился в потоке газообразного гелия, регулировка интенсивности которого позволяла поддерживать требуемую температуру образца. Датчик температуры был вмонтирован в латунный держатель в непосредственной близости от исследуемого образца. В качестве источника межзонного фотовозбуждения использовался непрерывный твердотельный лазер с диодной накачкой с длиной волны излучения 530 нм. В экспериментах, результаты которых представлены в настоящей работе, максимальная плотность фотовозбуждения составляла 120 Вт/см$^2$. Для ослабления интенсивности лазерного излучения использовался набор нейтральных стеклянных фильтров. Эксперименты проводились при нормальном падении возбуждающего излучения на поверхность исследуемого образца в двух геометриях. В первой геометрии излучение лазера накачки фокусировалось с помощью сферической линзы, а ТГц излучение регистрировалось в направлении "на проход" с противоположной стороны кремниевой пластины. Во второй геометрии экспериментов, результаты которых составили важную часть настоящей статьи, излучение накачки фокусировалось на поверхность кремниевой пластины в линию с помощью цилиндрической линзы, а ТГц излучение регистрировалось с боковой грани образца в направлении, перпендикулярном нормали к кремниевой пластине. В последнем случае на боковую выходную для ТГц излучения грань кремниевой пластины помещалась щелевая диафрагма, приготовленная из медной фольги толщиной 0.1 мм, с длиной отверстия 4 мм и шириной 0.5 мм. Спектральные измерения проводились со спектральным разрешением 5 см$^{-1}$ с использованием *step-scan* Фурье-спектрометра на область спектра 5–350 см$^{-1}$, описанного в деталях в [11]. Сигнал ТГц излучения измерялся с помощью охлаждаемого жидким гелием Si болометра методом синхронного детектирования на частоте модуляции пучка лазера механическим прерывателем (75 Гц).

При высоком уровне фотовозбуждения и при температурах выше 20–25 K было обнаружено появление сверхлинейной зависимости интенсивности внутриэкситонного ТГц излучения от интенсивности накачки. На рисунке 1 представлена зависимость спектрально интегрированной ТГц ФЛ высокочистого кремния от плотности фотовозбуждения при температурах 15, 25 и 30 K. Можно видеть, что при температуре 15 K интенсивность ТГц излучения линейно зависит от интенсивности накачки при изменении последней в диапазоне более, чем двух порядков. При температурах же 25 и 30 K интенсивность ТГц излучения становится явно сверхлинейной по интенсивности накачки при плотности фотовозбуждения выше 10 Вт/см$^2$. В этих условиях зависимость интенсивности ТГц ФЛ от интенсивности накачки может быть аппроксимирована степенной функцией с показателем степени 1.25–1.5 (см. рис. 1). При меньших плотностях фотовозбуждения интенсивность ТГц излучения остается практически линейной по накачке. Переход от линейной к сверхлинейной зависимости происходит при плотности фотовозбуждения порядка 7 Вт/см$^2$.

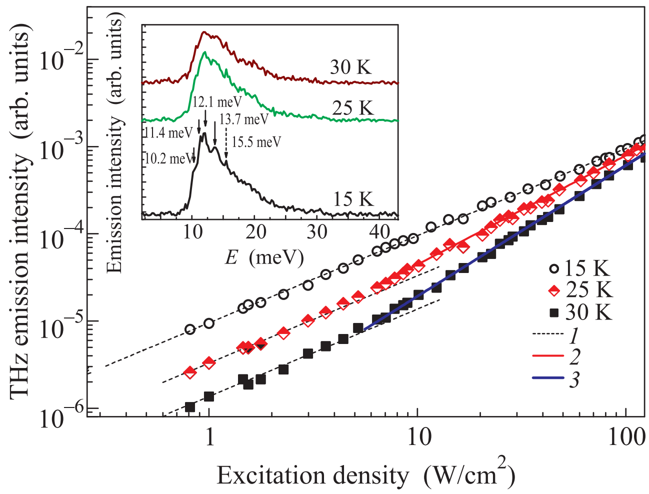


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость интегральной интенсивности ТГц фотолюминесценции в высокочистом кремнии от плотности межзонного фотовозбуждения. *1* – линейные функции, *2* – функция вида $y = C_1x^{1.25}$, *3* – функция вида $y = C_2x^{1.5}$, где $C_1$ и $C_2$ константы. На вставке приведены спектры ТГц излучения при температурах 15, 25 и 30 K. Спектры смещены по вертикали для ясности

На вставке в рис. 1 приведены спектры ТГц ФЛ при плотности фотовозбуждения порядка 64 Вт/см$^2$ и трех температурах, соответствующих основному рис. 1. При 15 K в спектре излучения хорошо видны особенности при 10.2, 11.4, 12.1 мэВ, обусловленные оптическими переходами между подуровнями состояний 2P и 1S свободных экситонов, а также особенность при энергии порядка 13.7 мэВ, связанная с переходами из высоко возбужденных состояний экситона на основное экситонное состояние [6]. В спектре ТГц излучения можно видеть также сравнительно узкую линию при 15.5 мэВ, отмеченную пунктирной стрелкой. Данная особенность видна на плавном бесструктурном фоне, который, скорее всего, связан с излучательными переходами из состояний континуума в основное состояние свободных экситонов [6]. Энергия узкой линии излучения при 15.5 мэВ превосходит энергию связи свободного экситона в Si (последняя составляет порядка 15 мэВ [12]) и поэтому ее не удается объяснить переходами между уровнями свободного экситона. Тем не менее, мы предполагаем, что данная линия имеет экситонную природу и речь о возможной интерпретации данной линии пойдет ниже. Видно, что линии внутриэкситонных излучательных переходов заметно уширяются с ростом температуры. С ростом температуры возрастает также относительный вклад линий при 13.7 и 15.5 мэВ в спектр ТГц излучения.

На рисунке 2 приведены спектры ТГц излучения при $T = 25$ K и трех различных плотностях фотовоз-

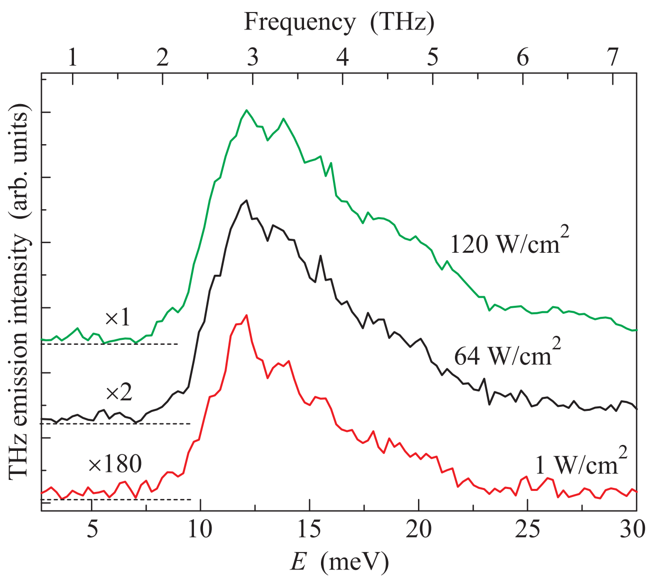


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры ТГц ФЛ в высокочистом кремний при $T = 25$ K и плотностях фотовозбуждения 1, 64 и 120 Вт/см$^2$. Спектры умножены на масштабные коэффициенты, значения которых указаны, и смещены по вертикали для ясности. Точечные линии соответствуют уровню нулевого сигнала

буждения: 1, 64 и 120 Вт/см$^2$. Можно видеть, что с ростом плотности фотовозбуждения весь спектр ТГц излучения заметно уширяется. С ростом плотности фотовозбуждения также возрастает вклад в спектр линий излучения при 13.7 и 15.5 мэВ.

На рисунке 3 приведен результат экспериментов в условиях возбуждения лазерным излучением, сфокусированным в линию длиной 2.5 мм и шириной порядка 0.15 мм. Терагерцовое излучение измерялось в направлении как вдоль линии возбуждения (конфигурация A на рис. 3), так и поперек (конфигурация

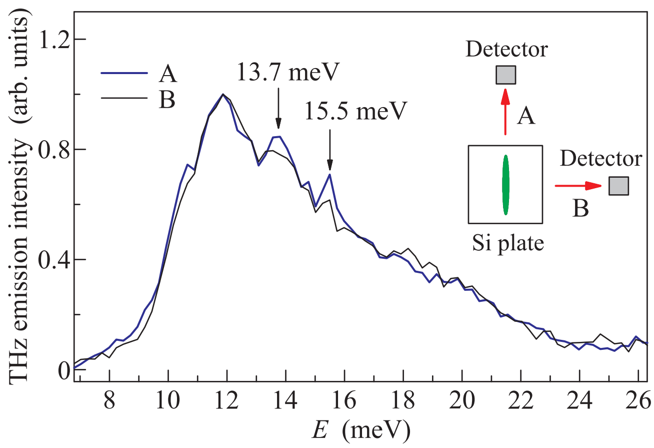


Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры ТГц ФЛ при плотность фотовозбуждения 35 Вт/см$^2$ и $T = 25$ K. Возбуждение сфокусировано в линию с размерами $2.5 \times 0.15$ мм$^2$. Спектры нормированы на максимум. На вставке показана геометрия экспериментов в конфигурациях A и B

B на рис. 3.). Плотность фотовозбуждения в таких экспериментах составляла порядка 35 Вт/см$^2$. Для анализа результатов спектры излучения были нормированы на максимум для того, чтобы компенсировать различие в сборе ТГц излучения и доставки его к детектору в конфигурациях A и B. Видно, что вклад ТГц излучения на линиях при 13.7 и 15.5 мэВ заметно возрастает в случае регистрации излучения вдоль линии фотовозбуждения (конфигурация A на рис. 3). Мы объясняем этот экспериментальный факт проявлением усиления ТГц излучения на данных линиях (*amplified spontaneous emission – ASE*), которое, в свою очередь, обусловлено инверсией населенности в системе экситонов в условиях эксперимента. Используя подход, аналогичный примененному в [13], можно оценить коэффициент ТГц усиления в системе. Полагая, что как в A-, так и B-случае ТГц ФЛ собирается и доставляется к детектору полностью, можно выразить регистрируемые сигналы, $I_A$ ($I_B$), следующим образом: $I_A \propto W n_x d h \int_0^L \exp(gx)dx$, $I_B \propto W n_x L h \int_0^d \exp(gy)dy$, где $n_x$ – концентрация экситонов в возбужденном состоянии, зависящая от плотности фотовозбуждения и температуры, $W$ – вероятность спонтанного испускания экситонами квантов ТГц излучения, $h$ – глубина проникновения излучения накачки, $L$ – длина полоски фотовозбуждения, $d$ – ее ширина, $g$ – коэффициент ТГц усиления. Отношения двух сигналов, $K = \frac{I_A}{I_B}$, поэтому принимает вид $K = \frac{d}{L} \cdot \frac{\exp(gL)-1}{\exp(gd)-1}$. С учетом того, что в условиях эксперимента коэффициент усиления не велик и $d \ll L$, коэффициент можно представить в виде:

$$K(\varepsilon) \approx 1 + \frac{g(\varepsilon)L}{2}, \qquad (1)$$

где $\varepsilon$ – энергия кванта ТГц излучения.

Обработка экспериментальных результатов, представленных на рис. 3 с использованием соотношения (1), позволила получить спектр усиления ТГц излучения в высокочистом кремнии. Спектр ТГц усиления при $T = 25$ K и плотности межзонного фотовозбуждения 35 Вт/см$^2$ приведен на рис. 4. В спектре видны две линии с положительным усилением при 13.7 и 15.5 мэВ. Отрицательные значения коэффициента $g$ соответствуют поглощению. Коэффициент усиления на линиях 13.7 и 15.5 мэВ составляет 0.5 и 1.0 см$^{-1}$, соответственно. Полученные значения коэффициента усиления сопоставимы с величинами усиления, типичными для ТГц лазера на внутрицентровых переходах в легированном донорами Si при накачке излучением $CO_2$-лазера [5]. Это указывает на возможность создания ТГц экситонного лазера на кремнии. Для реализации такого лазера необходимо обеспечить объемную накачку кристалла кремния и создать ТГц резонатор с малыми потерями.

Эксперименты по схеме, показанной на рис. 3, при температурах 15 K и ниже, в условиях, когда интенсивность ТГц излучения линейна по накачки, показали полное совпадение формы спектров излучения в A- и B-конфигурациях, т.е. отсутствие ТГц усиления. При $T = 30$ K и выше были получены результаты, аналогичные показанным на рис. 3 и 4, но спектры коэффициента усиления при этих температурах более зашумлены, чем спектр, показанный на рис. 4, вследствие того, что интенсивность внутриэкситонной ТГц ФЛ существенно падает с ростом температуры за счет проявления диссоциации экситонов [6, 7].

Сверхлинейную зависимость интенсивности ТГц экситонной фотолюминесценции от интенсивности межзонной накачки, наблюдаемую при плотности фотовозбуждения выше 10 Вт/см$^2$ и температурах выше 20–25 K, мы связываем с появлением стимулированного ТГц излучения и, соответственно, инверсии населенности в системе экситонов при их высокой плотности, возможность которой предсказывалась теоретически [8, 9]. Возможно, что экситон-экситонное взаимодействие, процессы типа Оже в системе экситонов играют существенную роль в формировании инверсии населенности между уровнями энергии экситонов (см., например, [9] и другие ссылки там) и повышенные температуры способству-

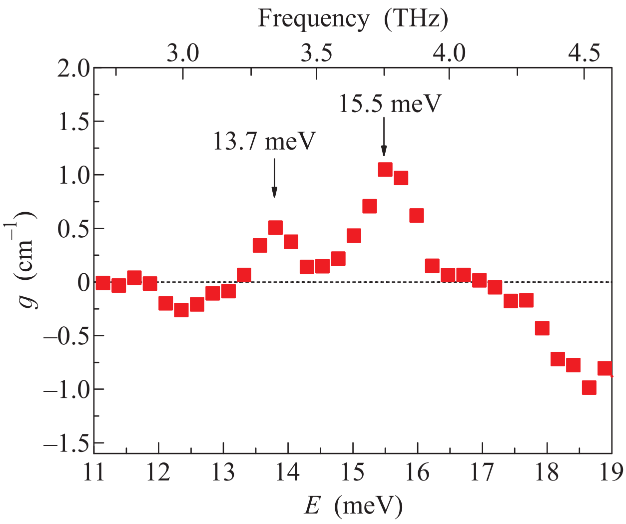


Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектр ТГц усиления в высокочистом кремнии при $T = 25$ K и плотности межзонного фотовозбуждения 35 Вт/см$^2$

ют проявлению таких процессов. Кроме того, при температурах, выше критической, для формирования ЭДЖ (последняя составляет порядка 24 K для Si [14]) все неравновесные электроны и дырки, созданные межзонной накачкой, связываются в экситоны. Наблюдение ТГц усиления на линиях при 13.7 и 15.5 мэВ непосредственно свидетельствует о появлении инверсии населенности в системе экситонов в кремнии при достаточно высоком уровне межзонного фотовозбуждения.

Линия при 13.7 мэВ в спектре ТГц усиления обусловлена инверсией населенности между высоковозбужденными состояниями свободных экситонов и основным экситонным состоянием. По-видимому, линия при 15.5 мэВ в спектре ТГц усиления связана с инверсией населенности между двухэкситонным и биэкситонным состояниями. Необходимо отметить, что возможность возникновения инверсии населенности между двухэкситонным и биэкситонным состояниями в условиях интенсивного однофотонного возбуждения экситонов из основного состояния кристалла рассматривалась теоретически в работе [15].

С излучательными переходами между двухэкситонным и биэкситонным состояниями связана, по-видимому, наблюдаемая в спектрах ТГц ФЛ (см. рис. 1 и 2) линия излучения при 15.5 мэВ. Это могут быть переходы между состоянием двух экситонов, один из которых находится в основном состоянии , а другой в возбужденном состоянии $X^*$ с энергией $E^*$ (имеется ввиду превышение энергии по отношению к энергии основного состояния экситона), и состоянием биэкситона $BX$ в основном состоянии. Процесс испускания кванта ТГц излучения с энергией $\hbar\omega_{\mathrm{THz}}$ с образование биэкситона из двух таких экситонов можно представить следующей реакцией:

$$X + X^* = BX + \hbar\omega_{\mathrm{THz}}. \quad (2)$$

Процесс "безызлучательного" образования (без появления ТГц излучения) биэкситона из двух экситонов в основном состоянии можно представить как:

$$X + X = BX + \Delta \quad (3)$$

где $\Delta$ – энергия связи биэкситона, т.е. энергия, которую необходимо затратить для отрыва одного экситона от биэкситона. Согласно результатам работы [16], энергия $\Delta$ составляет порядка 1.36 мэВ для Si и процессы типа (3) идут, скорее всего, с испусканием акустических фононов. Из (2) и (3) можно заключить, что

$$\hbar\omega_{\mathrm{THz}} = \Delta + E^*. \quad (4)$$

С учетом того, что энергия обсуждаемой линии ТГц излучения составляет 15.5 мэВ, из (4) следует, что $E^*$ составляет порядка 14.1 мэВ и такой экситон $X^*$ вполне может находится в состоянии со значением главного квантового числа порядка 4.

В заключение, в работе проведено исследование ТГц фотолюминесценции в высокочистом кремнии, обусловленной излучательными переходами между уровнями энергии свободных экситонов. Эксперименты проводились при гелиевых температурах в условиях стационарного межзонного фотовозбуждения с максимальной плотностью до 120 Вт/см$^2$. Обнаружено появление сверхлинейной зависимости интенсивности внутриэкситонного ТГц излучения от интенсивности накачки при высоком уровне фотовозбуждения и при температурах выше 20–25 К. Переход от линейной к сверхлинейной зависимости интенсивности ТГц ФЛ от интенсивности накачки происходит при плотности фотовозбуждения порядка 7 Вт/см$^2$. Наблюдаемые закономерности мы объясняем появлением стимулированного ТГц излучения и, соответственно, инверсии населенности в системе экситонов высокой плотности, возможность которой ранее предсказывалась теоретически. Получен спектр ТГц усиления, который демонстрирует линии при 13.7 и 15.5 мэВ. Значения коэффициента ТГц усиления на данных линиях составляют 0.5 и 1 см$^{-1}$, соответственно. Линию при 13.7 мэВ мы связываем с инверсией населенности между высоковозбужденными состояниями и основным состоянием свободных экситонов. Возможно, что линия при 15.5 мэВ отвечает инверсии населенности между двухэкситонным и биэкситонным состояниями. Полученные результаты указывают на то, что может быть создан новый тип терагерцового лазера на излучательных переходах в системе экситонов в кремнии в условиях межзонного фотовозбуждения.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 18-02-00002), а также при частичной поддержке специальной программы Президиума РАН "ТГц оптоэлектроника и спинтроника".

---


1. I. Melngailis, G. E. Stillman, J. O. Dimmock, and C. M. Wolf, Phys. Rev. Lett. **23**, 1111 (1969).
2. T. V. Adam, R. T. Troeger, S. K. Ray, P.-C. Lv, and J. Kolodzey, Appl. Phys. Rev. **83**, 1713 (2003).
3. P.-C. Lv, X. Zhang, J. Kolodzey, and A. Powell, Appl. Phys. Lett. **87**, 241114 (2005).
4. Yu. P. Gousev, I. V. Altukhov, K. A. Korolev, V. P. Sinis, M. S. Kagan, E. E. Haller, M. A. Odnobludov, I. N. Yassievich, and K.-A. Chao, Appl. Phys. Lett. **75**, 757 (1999).
5. S. G. Pavlov, R. Kh. Zhukavin, E. E. Orlova, V. N. Shastin, A. V. Kirsanov, H.-W. Hubers, K. Auen, and H. Riemann, Phys. Rev. Lett. **84**, 5220 (2000).
6. A. V. Andrianov and A. O. Zakhar'in, Appl. Phys. Lett. **112**, 041101 (2018).
7. A. V. Andrianov and A. O. Zakhar'in, Phys. Stat. Sol. (b) **256**, 18004961 (2019).
8. M. Kira, and S. W. Koch, Phys. Rev. Lett. **93**, 076402 (2004).
9. G. K. Vlasov and S. G. Kalenkov, Int. J. Infrared Millimeter Waves **4**, 955 (1983).
10. R. Huber, B. A. Schmid, Y. R. Shen, D. S. Chemla, and R. A. Kaindl, Phys. Rev. Lett. **96**, 017402 (2006).
11. Н. Н. Зиновьев, А. В. Андрианов, В. Ю. Некрасов, Л. В. Беляков, О. М. Сресели, G. Hill, and J. M. Chamberlain, ФТП **36**, 234 (2002).
12. M. S. Green, AIP Advances **3**, 112104 (2013).
13. K. L. Shaklee and R. F. Leheny, Appl. Phys. Lett. **18**, 475 (1971).
14. A. Forchel, B. Laurich, B. J. Wagner, W. Shmid, and T. L. Reinecke, Phys. Rev. B **25**, 2730 (1982).
15. П. И. Хаджи, И. В. Белоусов, А. В. Коровай, Д. А. Марков, Письма в ЖТФ **38**(6), 15 (2012).
16. A. G. Steele, W. G. McMullan, and M. L. W. Thewalt, Phys. Rev. Lett. **59**, 2899 (1987).