

ЭФФЕКТ РАЗМЕРНОГО КВАНТОВАНИЯ И СИЛЬНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ НЕЛИНЕЙНОСТИ В ПОРИСТОМ КРЕМНИИ

В.С.Диепровский, В.А.Караванский, В.И.Климов, А.П.Маслюк**

*Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова
119899 Москва, Россия*

**Институт общей физики РАН
117942 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 25 февраля 1993 г.

Обнаружены полосы просветления в развернутых во времени спектрах нелинейного пропускания пористого кремния, объясненные насыщением оптических переходов между уровнями размерного квантования в системе пространственно локализованных носителей.

Фотолюминесценция пористого кремния (ПК) в видимом диапазоне спектра может быть объяснена эффектом пространственного квантования носителей в тонких кремниевых нитях, образующихся в результате электрохимического травления исходного объемного материала^{1,2}. Однако дискретная структура оптических переходов, связанных с размерным квантованием носителей, до сих пор не наблюдалась ни в спектрах линейного поглощения, ни в спектрах люминесценции ПК.

В настоящей работе методами разрешенной во времени нелинейной спектроскопии пропускания зарегистрированы полосы просветления, объясненные насыщением оптических переходов в системе пространственно локализованных носителей. Наблюдаемые нелинейности характеризуются высокими значениями нелинейной кубической восприимчивости (до 10^{-8} СГС) и короткими релаксационными временами (около 40 пс).

Образцы ПК выращивались методом анодного травления (электролит – 50%-ный раствор HF в этаноле, плотность тока – 30 mA/cm^2) на подложке (111) сильнолегированного кремния *n*-типа. Пористый слой отделялся от подложки путем кратковременного увеличения плотности тока до 100 mA/cm^2 . Полученные образцы ПК представляли собой плоскопараллельные пластины толщиной 20–30 мкм, в спектрах комбинационного рассеяния которых регистрировался узкий пик с положением около 520 cm^{-1} , характерный для кристаллического кремния, и отсутствовали какие-либо полосы, указывающие на присутствие аморфной фазы.

Образцы ПК (300 К) возбуждались ультракороткими импульсами (УКИ) второй гармоники Nd:YAG лазера (длительность – около 20 пс, энергия фотона – 2,33 эВ) и зондировались с помощью УКИ "белого" света в различные моменты времени после действия импульса накачки. По данным измерений нелинейного пропускания рассчитывались спектры дифференциального пропускания $DT(\lambda) = [T(\lambda) - T_0(\lambda)]/T_0(\lambda)$, где $T(\lambda)$ и $T_0(\lambda)$ – спектры пропускания возбужденного и невозбужденного образца.

Спектры линейного поглощения исследуемых пластинок ПК (рис. 1) не содержат никаких-либо особенностей, указывающих на дискретные уровни оптических переходов в исследуемом материале. Коэффициент линейного поглощения

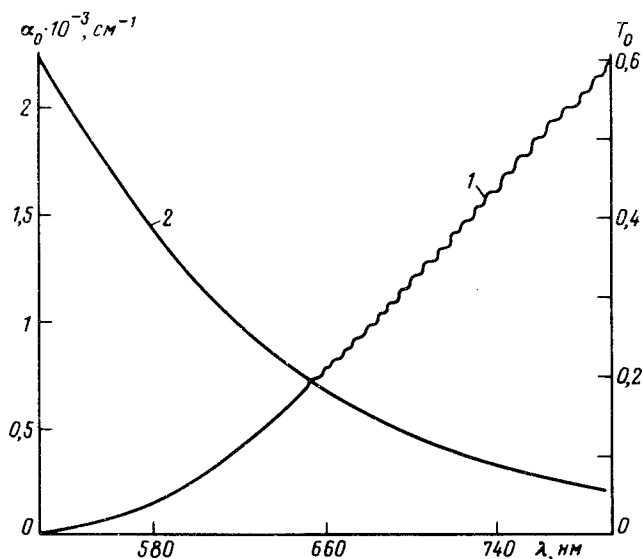


Рис.1. Спектры пропускания (1) и поглощения (2) невозбужденного образца ПК (толщина $d = 23$ мкм, $T = 300$ К)

α_0 быстро рос при энергиях фотона выше 1,3 эВ (от 60 см^{-1} при $\hbar\omega = 1,32$ эВ до $2,2 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ при $\hbar\omega = 2,36$ эВ), следуя зависимости $\alpha_0 \propto \exp(-\hbar\omega/\Gamma_g)$ с параметром $\Gamma_g = (0,32 \pm 0,06)$ эВ. По расстоянию между максимумами интерференционной структуры в спектре $T_0(\lambda)$ (см. рис.1) был определен линейный показатель преломления ПК: $n_0 = 1,9$, что почти вдвое меньше чем у объемного кремния.

На рис.2 приведены спектры дифференциального пропускания образца ПК для различных задержек Δt между УКИ возбуждения и зондирования. Полученные спектры соответствовали положительным значениям дифференциального пропускания, что указывало на действие эффекта наведенного просветления. При $\Delta t = 0$ в спектре $DT(\lambda)$ хорошо разрешались две сравнительно узкие полосы просветления со спектральным положением $\lambda_1 = 735,6$ нм и $\lambda_2 = 620,4$ нм (ширина полос по полувысоте составляла соответственно 75 и 56 мэВ). Величина наведенного изменения коэффициента поглощения $|\Delta\alpha|$ в области пика λ_1 достигала 240 см^{-1} ($|\Delta\alpha|/\alpha_0 \approx 0,6$). При увеличении задержки Δt до 20 пс полоса λ_2 исчезала из спектров $DT(\lambda)$. Время экспоненциальной релаксации полосы λ_1 составляло около 40 пс (вставка на рис.1).

Дискретную структуру спектров $DT(\lambda)$ и, в частности, спектральное положение полос просветления λ_1 и λ_2 можно объяснить насыщением оптических переходов в системе носителей, локализованных в квазиодномерных нитях. Отсутствие аналогичной структуры в спектрах линейного пропускания вызвано, по-видимому, сильным неоднородным уширением уровней размерного квантования (из-за дисперсии поперечных размеров нитей), которое существенно подавлено в спектрах нелинейного пропускания в связи с селективным действием узкополосного лазерного излучения накачки (этот эффект наблюдался

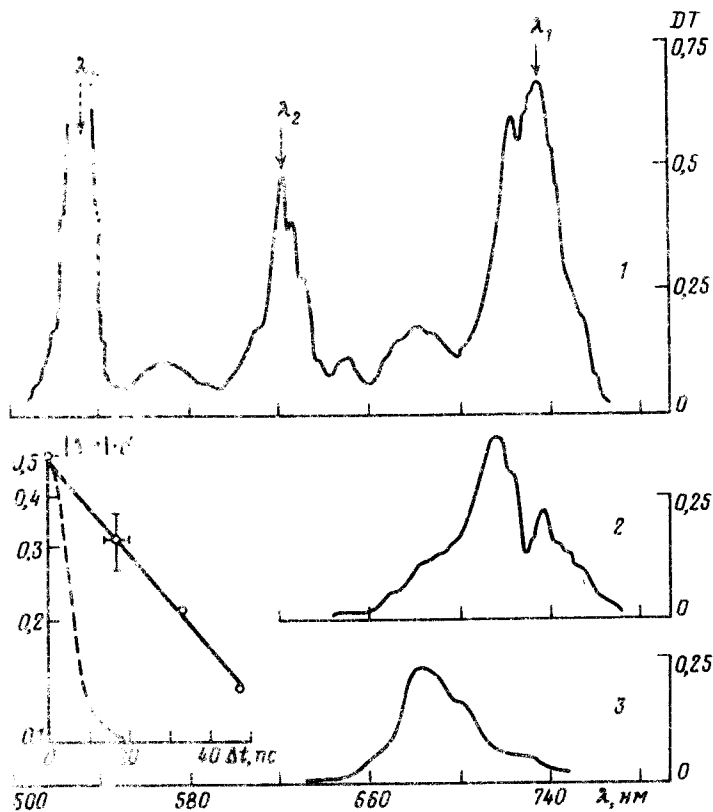


Рис.2. Спектры дифференциального пропускания образца ПК ($d = 23 \mu\text{м}$, $T = 300 \text{ К}$) при различных задержках Δt между УКИ возбуждения и зондирования: $\Delta t = 0$ (1), 17 пс (2), 33 пс (3). Вставка - динамика релаксации наведенных изменений коэффициента поглощения в максимуме полосы просветления λ_1 (штриховой линией показана динамика изменения площади перекрытия УКИ возбуждения и зондирования при изменении задержки Δt)

нами ранее при исследовании квазиульмерных нанокристаллов³ и подробно проанализирован в⁴).

При проведении оценок энергий оптических переходов рассмотрены нити, имеющие форму длинных параллелепипедов, ориентированных вдоль оси [001] (это направление является преимущественным при росте пор⁵), с гранями, перпендикулярными направлениям [110] и [110]. Для получения представления о характере оптических переходов в таких структурах можно рассмотреть проекцию зонной структуры объемного материала на одномерную зону Бриллюэна квантовой нити. При этом две электронные долины, лежащие в направлении [001], формируют не прямой минимум (с $k \sim \pm 0,4\pi/a$). Четыре электронные долины, лежащие в перпендикулярных направлениях, проецируются в центр зоны Бриллюэна и формируют абсолютный прямой минимум, благодаря чему квазиодномерный кремний, в отличие от объемного, является, по-видимому, прямозонным материалом⁶. Квантоворазмерный сдвиг уровней, соответствующих центру зоны Бриллюэна, определяется электронной массой для [110] направления m_{110}^* . Энергии оптических переходов в рассматриваемой квази-

одномерной структуре можно найти из следующего выражения (пренебрегаем кулоновскими эффектами и спин-орбитальным расщеплением):

$$E_{n_1 n_2}^{l(h)} = E_g^x + \frac{\hbar^2 \pi^2 (n_1^2 + n_2^2)}{2\mu_{l(h)} L^2}, \quad (1)$$

где E_g^x - величина не прямой энергетической щели в объемном кремнии, $\mu_{l(h)} = m_{110}^e m_{l(h)}^h / (m_{110}^e + m_{l(h)}^h)$ - приведенная масса носителей для легких (l) и тяжелых (h) дырок, n_1 и n_2 - квантовые числа (принимают значения 1, 2, 3 и т.д.), L - поперечный размер нитей. Полосы λ_1 и λ_2 , регистрируемые в спектрах $DT(\lambda)$, можно связать с насыщением двух нижних оптических переходов E_{11}^h и E_{11}^l . Коротковолновый сдвиг этих полос относительно E_g^x составляет 0,57 (λ_1) и 0,89 эВ (λ_2), что с учетом выражения (1) соответствует поперечному размеру нитей 2,6-2,8 нм. Причина доминирующего вклада нитей именно этого размера в спектры нелинейного пропускания связана, по-видимому, с тем обстоятельством, что энергия третьего оптического перехода $E_{12}^h (E_{21}^h)$ в них близка к энергии лазерного фотона, что и обеспечивает высокую эффективность их взаимодействия с падающим излучением.

Полученные данные позволяют оценить мнимую часть резонансной нелинейной кубической восприимчивости керровского типа $\text{Im}\chi^{(3)}$, которая в случае относительно низких концентраций носителей n_e (при которых $\chi^{(3)}$ играет доминирующую роль в формировании нелинейно-оптического отклика) может быть определена из соотношения

$$\text{Im}\chi^{(3)}(\omega) = \frac{c^2 n_0^2 \tau_e \alpha_0(\omega) \Delta\alpha(\omega)}{8\pi^2 \omega \hbar \omega n_e}, \quad (2)$$

где τ_e - характерное время жизни носителей. Используя в (2) результаты проведенных измерений, получим $|\text{Im}\chi^{(3)}| \cong 10^{-8}$ СГС, что на несколько порядков выше значений, характерных для нерезонансных нелинейностей в прозрачных нелинейно-оптических материалах.

В заключение отметим, что в проведенных измерениях обнаружена дискретная структура развернутых во времени спектров нелинейного пропускания пористого кремния, которая может быть объяснена действием эффектов размерного квантования. Зарегистрированные в работе сильные и быстрорелаксирующие нелинейности позволяют рассчитывать на возможность создания на базе пористого кремния не только эффективных излучателей, но также и совместимых с ними скоростных нелинейно-оптических переключателей.

-
1. L.T.Canham. Appl. Phys. Lett. **57**, 1046 (1990).
 2. M.Voos, Ph.Uzeln, C.Delalande and G.Bastard, Appl. Phys. Lett. **61**, 1213 (1992).
 3. Ю.В.Вандышев, В.С.Днепровский, В.И.Климов, ЖЭТФ **101**, 270 (1992).
 4. В.И.Климов, ФТТ **34**, 2472 (1992).
 5. R.L.Smith and S.D.Collins, J. Appl. Phys. **71**, R1 (1992).
 6. F.Buda, J.Kohanoff, and M.Parrinello, Phys. Rev. Lett. **69**, 1272 (1992).