

Нелинейное поглощение пикосекундного импульса в $a\text{-Si:H}$

© А.А. Бугаев, О.И. Коньков, Е.И. Теруков

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

(Поступила в Редакцию 5 августа 1999 г.)

Приводятся результаты исследований наведенного поглощения в пленке $a\text{-Si:H}$, индуцированного пикосекундным лазерным импульсом с энергией кванта, незначительно превышающей ширину запрещенной зоны. Для резонансного возбуждения образца использовались пикосекундные импульсы вынужденного комбинационного рассеяния, получаемые при накачке кювет с метаном и водородом. Показано, что поперечное сечение поглощения складывается из поглощения свободных носителей и поглощения дырок, захваченных на локализованные уровни в "хвосте" зоны проводимости.

Работа выполнена в рамках проекта Министерства науки и техники России "Оптика. Лазерная физика".

Аморфный гидрированный кремний ($a\text{-Si:H}$) вызывает большой интерес из-за перспектив его практического использования в качестве солнечных элементов, а также светоизлучательных структур в интегральном исполнении для телекоммуникационных систем [1]. В последнем случае $a\text{-Si:H}$ используется как твердотельная матрица, легирование которой редкоземельными ионами позволяет производить возбуждение их люминесценции через свободные носители, создаваемые электронной накачкой [2,3]. Получаемые таким образом фотонные элементы идеально сопрягаются с окружением в интегральных оптоэлектронных устройствах. Процесс нелинейного взаимодействия, связанный с фотовозбуждением и релаксацией возбужденного состояния $a\text{-Si:H}$, исследовался в ряде работ с использованием светового импульса длительностью от микро- до фемтосекундного диапазона времен [4–11]. В этих исследованиях изучались процессы захвата возбужденных носителей на мелкие и глубокие ловушечные центры, механизмы их рекомбинации и механизм светоиндуцированного поглощения в середине запрещенной зоны $a\text{-Si:H}$.

В настоящей работе проведены исследования нелинейного поглощения пикосекундного светового импульса с энергиями кванта 1.978 и 1.825 eV, которые незначительно превышали $E_g = 1.8$ eV $a\text{-Si:H}$. На основании полученных результатов определено эффективное поперечное сечение поглощения возбужденных носителей, складывающееся из поглощения свободных носителей и носителей, захваченных на локализованные уровни.

В экспериментах использовался образец аморфного гидрогенизированного кремния на подложке из плавленого кварца, полученный методом магнетронного распыления Si в атмосфере аргона и водорода и имевший толщину 2.32 μm . Для этого образца измерялась дисперсия поглощения и рефракции пленки путем измерения спектральной зависимости коэффициента ее отражения при наклонном падении (50°) для S - и P -поляризованного света. Для используемых энергий кванта пикосекундного импульса коэффициент поглощения составлял $1.5 \cdot 10^4$ ($\hbar\omega = 1.978$ eV) и $1.1 \cdot 10^4$ cm^{-1} ($\hbar\omega = 1.825$ eV). Ширина запрещенной зоны $a\text{-Si:H}$ определялась по энер-

гии кванта, при которой $\alpha = 10^4$ cm^{-1} , и оказалась равной 1.8 eV.

Для исследования нелинейного поглощения использовался одиночный лазерный импульс от генератора на YAG:Nd с пассивной самосинхронизацией мод по схеме сталкивающихся импульсов. После усиления энергия импульса составляла 5 мДж при длительности 27 ps на половине амплитуды. Далее излучение основной частоты ($\hbar\omega = 1.17$ eV) преобразовывалось в импульс второй гармоники ($\hbar\omega = 2.34$ eV), который по схеме "на отражение" возбуждал импульс вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в кювете, содержащей метан (CH_4) или водород (H_2) при давлении 20 atm. Длины волн и энергии первых стоксовых компонент, образующих пикосекундный ВКР-импульс, составляли 0.627 μm , 1.978 eV (CH_4) и 0.697 μm , 1.825 eV (H_2).

В экспериментах исследовалась энергетическая зависимость пропускания ВКР-импульса через пленку $a\text{-Si:H}$ и релаксация наведенного поглощения. В первом случае образец $a\text{-Si:H}$ размещался вблизи области фокальной перетяжки линзы ($F = 150$ mm), а изменение уровня возбуждения достигалось с помощью калиброванных светофильтров. Предварительно для определения величины пиковой плотности энергии E_0 на возбуждаемой поверхности $a\text{-Si:H}$ образец аморфного кремния замещался точно по своему положению пластиной CdS. По величине наведенного поглощения в CdS ($E_g = 2.42$ eV), за которую ответствен двухфотонный межзонный переход, рассчитывалось значение пиковой интенсивности I_0 возбуждающего импульса [12]. Необходимые при этом значения коэффициента двухфотонного поглощения для длин волн ВКР-импульса 0.627 и 0.697 μm рассчитывались по соотношениям, приведенным в [13,14], и оказались равными 6.12 и 9.6 cm^2/JW соответственно. Во втором случае для исследования релаксации наведенного поглощения использовалась известная схема зондирования с предварительным возбуждением, в которой возбуждающий и зондирующий импульсы были ортогонально поляризованы. Результаты измерений приведены на рис. 1 и 2.

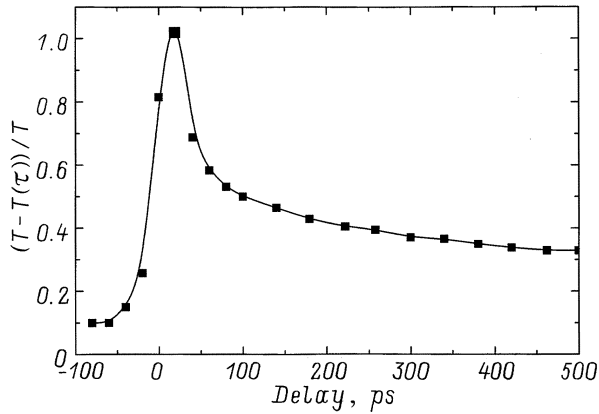


Рис. 1. Кинетика релаксации наведенного поглощения пикосекундного импульса в *a*-Si:H при концентрации носителей 10^{19} cm^{-3} . Точки — результаты эксперимента. Кривая — аппроксимация по методу наименьших квадратов.

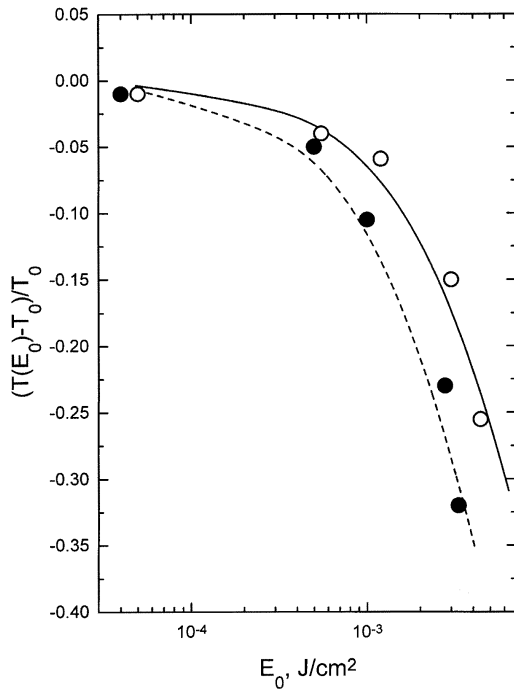


Рис. 2. Энергетическая зависимость нелинейного поглощения импульса в *a*-Si:H при возбуждении ВКР-импульсом с энергией кванта 1.825 (сплошная кривая) и 1.978 eV (штриховая кривая). Кривые — результат численной подгонки решения (2), точки — данные эксперимента.

Прежде всего заметим, что результаты измерений кинетики релаксации наведенного поглощения (рис. 1) при начальной концентрации возбужденных носителей $N \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ в интервале задержек до $\sim 150 \text{ ps}$ демонстрируют примерно обратную пропорциональную зависимость затухания от времени ($1/\tau$), после чего релаксация значительно замедляется. Поведение релаксации в интервале 150 ps находится в хорошем соот-

ветствии в ранее выдвинутой модели [11], согласно которой процесс рекомбинации относится к типу Оже и происходит с участием двух свободных (электрон и одного захваченного на ловушку (дырка) носителей). При условии, что захват дырки происходит быстрее захвата электрона (в соответствии с большей шириной "хвоста" плотности состояний валентной зоны) и при высоких концентрациях, когда $n = p > N_t$ (N_t — плотность локализованных состояний), кинетическое уравнение для электронов приобретает вид квадратичной, а не кубической зависимости $dn/dt = -\gamma_n N_t n^2$ и соответствует наблюдающемуся характеру рекомбинации с коэффициентом $B = \gamma_n N_t$. Согласно данным работ [6–10], неравенство $n = p > N_t$ начинает выполняться при концентрации носителей $\sim 3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, выше которой рекомбинация приобретает преимущественно бимолекулярный характер с константой $B \sim 10^{-9} \text{ s}$. Нетрудно видеть, что для максимальных уровней концентраций в условиях нашего эксперимента ($\geq 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) нелинейное поглощение импульса длительностью 27 ps слабо зависит от процесса рекомбинации, время которого $B^{-1} N^{-1} \geq 100 \text{ ps}$.

Из рис. 2 видно, что прохождение импульса через пленку *a*-Si:H сопровождается значительным уменьшением ее пропускания, величина которого падает по мере роста плотности энергии импульса на 30%. Такое изменение ($\Delta T/T_0 \sim \Delta \alpha d = 0.3$) примерно соответствует величине наведенного поглощения $\Delta \alpha \sim 10^3 \text{ cm}^{-1}$. Характер полученной зависимости $\Delta T/T_0 = f(E_0)$ весьма близок той, которая наблюдается в аналогичных условиях возбуждения для *c*-Si и которая обусловлена поглощением свободных носителей, создаваемых за счет непрямого межзонного перехода в *c*-Si [15,16]. У нас нет оснований полагать, что нелинейное поглощение помимо нестационарной нелинейной восприимчивости включает также стационарную (безынерционную) восприимчивость — двухфотонное поглощение. Поэтому для анализа полученных результатов (рис. 2) можно ограничиться системой уравнений, которая описывает распространение светового импульса в среде с нестационарной восприимчивостью третьего порядка в пренебрежении процессом диффузии

$$\frac{\partial I(z, t)}{\partial z} = -\alpha I(z, t) - \sigma_f N_f(z, t) I(z, t) - \sigma N(z, t) I(z, t),$$

$$\frac{\partial N(z, t)}{\partial t} = \frac{N_f(z, t)}{\tau_f} - B N^2(z, t),$$

$$\frac{\partial N_f(z, t)}{\partial t} = \frac{\alpha I(z, t)}{\hbar \omega} - \frac{N_f(z, t)}{\tau_f}, \quad (1)$$

где N_f , σ_f — концентрация и поперечное сечение поглощения свободных носителей; N , σ — те же величины, но для носителей, захваченных на локализованные уровни; τ_f — время захвата носителей; α — коэффициент линейного поглощения.

Поскольку данные о τ_f отсутствуют, а рекомбинацией носителей за время импульса можно пренебречь, то систему (1) целесообразно преобразовать к виду

$$\frac{\partial I(z, t)}{\partial z} = \alpha I(z, t) - \sigma_{\text{eff}} N_f(z, t) I(z, t),$$

$$\frac{\partial N_f(z, t)}{\partial t} = \frac{\alpha I(z, t)}{\hbar\omega}, \quad (2)$$

в которой $\sigma_{\text{eff}} = \sigma_f N_f + \sigma N$, а σN принимается константой ($n = p > N_i$). Интегрирование системы (2) производилось численным методом при переменном параметре σ_{eff} . Отыскивалось решение для пропускания по энергии светового импульса, имеющего гауссову пространственно-временную форму огибающей интенсивности $T = \int_0^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{out}}(r, t) dt dr / \int_0^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{in}}(r, t) dt dr$.

Численная подгонка решения (2) к результатам эксперимента приведена на рис. 2 в виде сплошных линий. Для обеих длин волн наилучшее совпадение было достигнуто при значениях σ_{eff} , равных $4 \cdot 10^{-17}$ ($\hbar\omega = 1.978$ eV) и $6 \cdot 10^{-17}$ cm^2 ($\hbar\omega = 1.825$ eV). Этот результат находится в хорошем соответствии с результатами работы [6], согласно которой изменение экстинкции достигает $\Delta k \sim 0.03$ при концентрации носителей 10^{20} cm^{-3} , что, как нетрудно видеть, отвечает величине $\sigma \sim 7 \cdot 10^{-17}$ cm^2 .

Таким образом, видно, что поперечное сечение поглощения носителей в *a*-Si:H примерно на порядок превышает аналогичную величину в *c*-Si, для которой $\sigma = 6 \cdot 10^{-18}$ cm^2 [17]. С другой стороны, в исследованиях [4] было показано, что наведенное поглощение в *a*-Si:H преимущественно обусловлено переходами дырок, захваченных на локализованные уровни, в зону проводимости с поперечным сечением поглощения $\sigma = 10^{-16}$ cm^2 . Отсюда можно заключить, что нелинейное поглощение пикосекундного импульса в *a*-Si:H является результатом комбинированного действия процессов поглощения свободных носителей и фотоионизацией дырок, захваченных на локализованные уровни в "хвосте" зоны проводимости.

Авторы выражают признательность Б.П. Захарчене за интерес и поддержку настоящей работы.

Список литературы

- [1] Amorphous Silicon Technology — MRS Symposium Proceedings. V. 420 / Ed. by M. Hack, E.A. Schiff, S. Wagner, R. Schropp, A. Matsuda. Pittsburgh, Pensilvania (1996). 909 p.
- [2] Rare Earth Doped Semiconductors II — MRS Symposium Proceedings. V. 422 / Ed. by S. Coffa, A. Polman, R.N. Schwartz. Pittsburgh, Pensilvania (1996). 382 p.
- [3] Material and Devices for Silicon-Based Optoelectronics — MRS Symposium Proceedings. V. 486 / Ed. by A. Polman, S. Coffa, R. Soref. Warrendale, Pensylvalia (1997). 409 p.
- [4] P. O'Connor, J. Tauc. Phys. Rev. **B25**, 4, 2748 (1982).
- [5] S. Komura, Y. Aoyagi, Y. Segava, S. Namba, Masuyama, H. Okamoto, Y. Hamakawa. Appl. Phys. Lett. **42**, 1, 79 (1983).

- [6] A. Esser, K. Seibert, H. Kurz. Phys. Rev. **B41**, 5, 2879 (1989).
- [7] P.M. Fouchet, D. Hulin, R. Vanderhaghen, A. Mourchid, W.L. Nighan. J. Non-Cryst. Solids. **141**, 2, 76 (1992).
- [8] R. Vanderhaghen, A. Mourchid, D. Hulin, D.A. Yong, W.L. Nighan, P.M. Fourchet. J. Non-Cryst. Solids **137–138**, 9, 543 (1991).
- [9] R.I. Devlen, G.S. Kanner, Z. Vardeny, J. Tauc. Solid State Commun. **78**, 10, 665 (1991).
- [10] G. Juska, M. Viliunas, K. Arlauskas, J. Kocka. Phys. Rev. **B51**, 23, 16 668 (1995).
- [11] G. Juska, J. Kocka, M. Viliunas, K. Arlauskas. J. Non-Cryst. Solids. **164–166**, 8, 579 (1993).
- [12] A.A. Бугаев, А.Л. Станкевич. ФТТ **34**, 5, 1622 (1992).
- [13] C.A. Pidgeon, B.S. Werrett, A.M. Johnston, J. Dempsey, A. Miller. Phys. Rev. Lett. **42**, 11 (1979).
- [14] B.S. Werrett. J. Opt. Soc. Am. **B1**, 1 (1984).
- [15] T.F. Boggess, K.M. Bohnert, K. Mansour, S.C. Moss, I.W. Boyd, A.L. Smirl. IEEE J. Quant. Electron. **QE–22**, 33 (1986).
- [16] А.А. Бугаев, Б.П. Захарченя, Ю.Б. Киселев, В.А. Лукошкин. ДАН СССР **296**, 5, 1098 (1987).
- [17] K.G. Svantesson. J. Phys. D: Appl. Phys. **12**, 4, 425 (1979).