

硅的间接跃迁双光子吸收系数谱*

崔昊杨^{1)2)†} 李志锋²⁾ 马法君²⁾ 陈效双²⁾ 陆卫²⁾

1)(上海电力学院计算机与信息工程学院,上海 200090)

2)(中国科学院上海技术物理研究所红外物理国家重点实验室,上海 200083)

(2009 年 7 月 18 日收到;2010 年 4 月 19 日收到修改稿)

利用皮秒 Nd:YAG 脉冲激光器作为激发光源,测量出光子能量介于 $1.36 \mu\text{m}$ (0.912 eV)— $1.80 \mu\text{m}$ (0.689 eV)之间的硅间接跃迁双光子吸收系数谱. 尽管此波段范围内的激光光子能量小于硅间接带隙,但当激光辐照在硅基光电二极管受光面时,在二极管两电极端仍然探测到了显著的脉冲光伏信号. 光伏信号峰值强度与入射光强呈二次幂函数关系,表明其是双光子吸收过程. 采用 pn 结等效电容充放电模型,将光伏响应信号峰值与入射光强相关联,从中提取出硅的间接跃迁双光子吸收系数,改变入射波长得到系数谱. 研究表明:当入射光子能量从 0.689 eV 增加至 0.912 eV ,硅的双光子吸收系数从 0.42 cm/GW 逐渐增大到 1.17 cm/GW . 双光子吸收系数随入射光子能量增加而增大的机理归结为从价带激发的电子占据了更多的导带量子态. 利用现有的 Dinu 理论模型解释了双光子吸收系数谱的这种频率特性.

关键词: 双光子吸收, pn 结, 光伏信号, 间接跃迁

PACC: 4265, 7230, 7280C, 7340J

1. 引 言

双光子吸收是一类重要的非线性光学现象,因其具有与单光子吸收不同的选择定则和不受表面效应影响的特性,被认为是一种研究半导体光学和电学性质的有力工具^[1-3]. 尽管已经对多种材料进行了大量的双光子吸收测量实验,得到了较为丰富的双光子吸收系数实验数据,但对于硅材料这种间接带隙的半导体(间接带隙为 E_{ig}),其双光子吸收的实验数据仍比较稀缺. 鉴于硅材料在制备光学开关^[4]以及激光器等多种光学器件中有很大的应用潜力,双光子吸收系数的确定将具有重要意义^[5-7]. 再者,由于硅所具备的成熟处理工艺和 SOI 材料所具有的稳定性,使其更适合制备光学通信($1.5 \mu\text{m}$)领域中的集成、低通光学波导^[8,9]以及密集型光波复用(DWDM),当半导体激光器发送的光功率达到一定强度时,波导和 DWDM 在强电磁场作用下将呈现非线性效应,双光子吸收成为光在传输过程中损耗的主要因素,此时就必须考虑这种吸收产生的影响. 所以,硅的双光子吸收系数是制备和优化硅基

光学器件不可或缺的基本参数,有必要对双光子吸收系数实验数据形成一定的积累.

与单光子吸收跃迁类似,硅中的双光子吸收也分为直接跃迁和间接跃迁,即价带中的电子既可以吸收两个较高能量的光子,在 Brillouin 区 Γ 点处发生直接跃迁,也可在极短时间内吸收两个能量大于 $E_{ig}/2$ 而小于 E_{ig} 的光子,在声子的辅助下从 Γ 点处跃迁至 X 点附近的能谷中完成间接跃迁. 硅在高端的直接跃迁双光子吸收系数谱已有报道^[10]. 而本文的主要工作将是利用一个波长可连续调谐的脉冲激光辐照硅光电二极管,通过等效 RC 电路模型将脉冲光电响应信号峰值与入射光强相关联,以此提取出硅在室温下透射波段(1.36 — $1.80 \mu\text{m}$)的间接跃迁双光子吸收系数谱.

2. 实 验

所用的硅基光电二极管由 Fourier 变换光谱仪测量室温下的光电流谱,确定其间接带隙为 1.12 eV ,与此相对应的波长为 $1.11 \mu\text{m}$. 硅材料的晶向为 $\langle 111 \rangle$. 对该光电二极管进行室温下单光束激发的

* 上海市教育委员会科研创新基金(批准号:10YZ158)和上海高校选拔培养优秀青年教师科研专项基金(批准号:SD108025)资助的课题.

† E-mail: cuihy@mail. sitp. ac. cn

双光子吸收测量,所采用的实验装置如图 1 所示. 激发光源为 Nd:YAG 激光器 (30 ps, 10 Hz) 抽运 PG401/DFG 光学参量产生器/差频放大器, 输出波长在 0.64—2.3 μm 间可连续调谐. 激光脉冲的超短持续时间和低重复率特性可保证第二束脉冲激光入射之前, 二极管中的载流子已经由激发态恢复到基态; 同时, 激光辐照器件所产生的热积累效应也可被忽略. 激光器系统内置滤光片可滤除谐波分量的干扰, 从而保证激光束的质量. 输出光强的变化通过调节激光器放大级 YAG 棒的放大倍数实现.

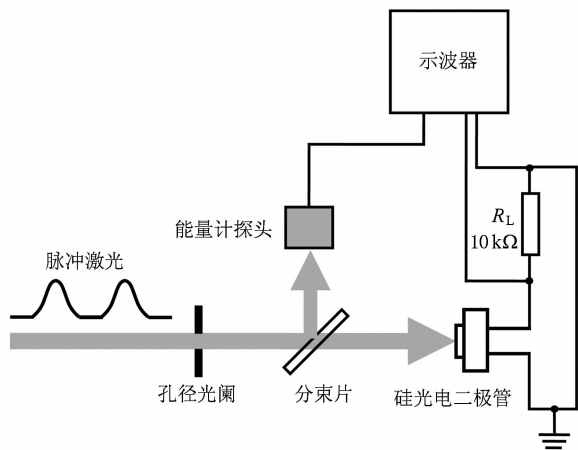


图 1 硅光电二极管双光子吸收实验装置图

实验所用的激光光子能量范围在 0.689 eV (1.80 μm) < $\hbar\omega$ < 0.912 eV (1.36 μm) 之间, 是硅间接带隙能量的 60%—80% 左右. 出射光束首先由孔径光阑 (直径为 2.1 mm) 限定光斑直径, 再经分束片分为反射光和透射光. 反射光由 COHERENT J4-09 型能量计探头探测, 用以监控透射激光的能量. 将硅光电二极管放置于光轴上. 通过监测电路中负载电阻 ($R_L = 10 \text{ k}\Omega$) 两端的电压降, 可反映出二极管两电极端光伏信号的变化. 二极管的光电响应信号和能量计探头采集到的信号通过同轴电缆线同时送入 Agilent Infiniium 54832B 数字示波器中存储记录. 为提高信噪比, 测量值取 500 次单脉冲激发的平均值.

3. 结果和讨论

尽管入射激光的光子能量远小于硅的间接带隙, 将其辐照在硅光电二极管受光面时, 仍在二极管两电极端观察到了显著的脉冲光伏响应信号, 表现为快速上升和缓慢下降两个阶段, 如图 2 (a) 所

示. 取其峰值 V_p 作为探测器光响应的数值. 改变入射光的波长与光强, 得到不同波长下光伏信号的峰值随入射光强的变化关系, 如图 2 (b) 所示. 从中可以看出: 随激发光强的增强, 同一波长下脉冲光伏信号的峰值显著增强; 而随入射波长的增加, 相同入射光强下的脉冲光伏信号峰值逐渐减弱. 该实验现象表明: 光伏信号峰值的强弱同光生载流子的浓度密切相关. 二极管中所产生的光生载流子可归结为由双光子吸收产生, 这是因为: 对实验所使用的 $10^6 \text{ W}/\text{cm}^2$ 左右的入射光强, 由三光子或多光子吸收导致的直接跃迁相对于声子辅助的双光子吸收间接跃迁可忽略不计^[8,10]; 另一方面, 对双对数坐标系中光伏信号峰值 V_p 与入射光强 I 关系进行线性拟合, 拟合直线的斜率近似为 2, 说明两者呈二次幂函数关系, 更进一步说明双光子吸收是光生载流子产生的主要机制^[11]. 此外, 由于自由载流子对入射光的吸收为双光子吸收的 10^{-6} 量级左右, 以及二极

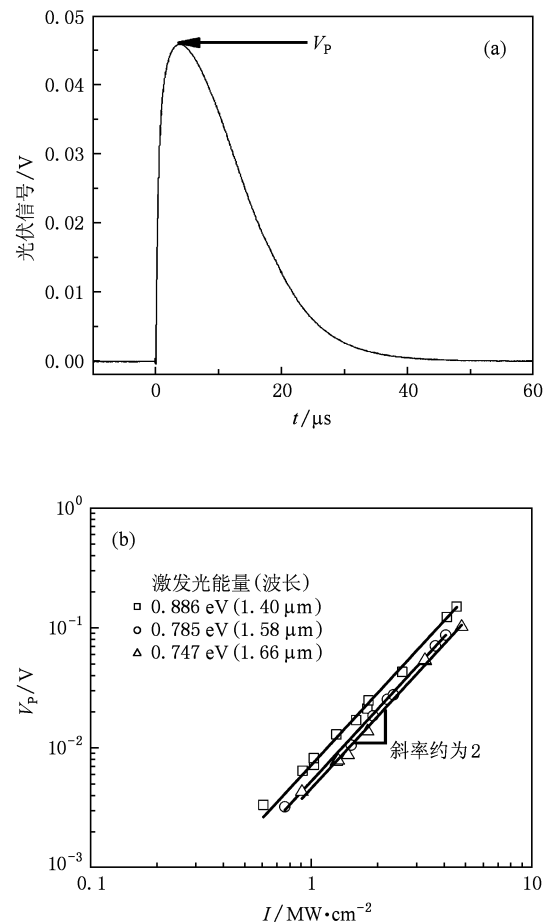


图 2 硅光电二极管在脉冲激光照射下的光电特性 (a) 脉冲激光辐照器件得到的光伏信号随时间的变化, (b) 脉冲光伏信号的峰值在不同入射波长下随激发光强的变化关系

管耗尽区中的电场强度远小于对双光子吸收系数产生显著影响的场强, 所以自由载流子吸收所产生的影响和 Franze-Keldysh 效应对双光子吸收的影响也可被忽略^[12]. 综上所述, 本文对实验结果的讨论仅仅考虑间接跃迁的双光子吸收过程.

忽略二极管中载流子具体的产生-复合机制, 则图 2(a) 中脉冲光伏响应信号随时间的变化关系可采用 pn 结等效电容的充放电过程来描述^[13-15]: 二极管耗尽区中由 n 区指向 p 区的内建电场将光生电子-空穴对分离, 光生空穴漂移至 p 区而光生电子漂移至 n 区, 导致 p 区和 n 区中空穴与电子的积累, 这相当于对 pn 结等效电容进行充电, 与图中 $t = 0$ 时刻光伏信号所出现的快速上升阶段相对应; 此后, 积累的光生载流子通过由负载电阻和结等效电容形成的 RC 电路复合湮灭, 这相当于等效电容的放电, 与光伏响应信号的缓慢衰减阶段相对应. 由此可知: 示波器实时记录光电信号的衰减曲线是 pn 结所收集到的光生载流子的湮没过程, 衰减时间常数由电路中等效 RC 常数主导.

利用上述等效结电容充放电模型, 可从光伏信号峰值随入射光强的变化关系中提取出硅的间接跃迁双光子吸收系数. 光伏信号峰值可以表示为: $V_p = Q/C$, 其中 Q 为光生载流子电量. C 为 pn 结等效结电容, 利用 HP4194A 型阻抗分析仪测量室温零偏压下的 C - f 特性可以确定器件在响应频率下 (约 20 kHz) 结等效电容 C 为 288 pF. 设光生电子和光生空穴的布居数相等, 则光生载流子浓度可表示为^[13]

$$\Delta n = \Delta p = \frac{1}{2} \beta_{\text{TPA}} I^2 \Delta t (\hbar\omega)^{-1}, \quad (1)$$

其中, β_{TPA} 为双光子吸收系数, $I = (1 - R) I_0$ 为激发光强, I_0 为入射光强, R 为光电二极管受光表面的反射系数, Δt 和 $\hbar\omega$ 分别为激光脉冲持续时间和光子能量. 由于双光子吸收系数很小, 作为一个很好的近似, 可忽略光强与入射深度的变化关系. 将光伏信号峰值与入射光强相关联:

$$\Delta V_p = \frac{q}{2} \beta_{\text{TPA}} I^2 \Delta t A_{\text{area}} L (C \hbar\omega)^{-1}, \quad (2)$$

其中 q 为电荷电量, A_{area} 为辐照在二极管上的光斑面积, 大小为 $3.46 \times 10^{-2} \text{ cm}^2$ (光斑直径 2.1 mm), L 为硅的厚度. 利用(2)式对不同波长下光伏信号峰值随入射光强的关系进行拟合, 得到不同入射光子能量下的双光子吸收系数, 即双光子吸收系数谱, 以实心三角示于图 3 中. 从中可以看出, 当入射光子

能量从 0.689 eV 增加到 0.912 eV, 双光子吸收系数从 0.42 cm/GW 增大至 1.17 cm/GW. 其中与入射光子能量为 0.827 eV (1.5 μm) 相对应的双光子吸收系数为 $\beta_{\text{TPA}} = 0.9 \text{ cm/GW}$, 与同一波长下 Rieger^[9] 所报道的实验值 $0.9 \pm 30\% \text{ cm/GW}$ 以及 Dinu^[16] 所报道的实验值 $0.8 \pm 15\% \text{ cm/GW}$ 较为符合. 图 3 中 β_{TPA} 随入射光子能量增加而增大的趋势可定性解释为: 当入射光子能量从 $E_{\text{ig}}/2$ 向 E_{ig} 增加的过程中, 从价带激发的电子可以占据更多的导带量子态, 这导致双光子吸收系数相应地增大. 相同的趋势也存在于 GaN 和 GaInN 等直接带隙半导体材料中^[17].

为进一步理解硅间接跃迁的双光子吸收系数随入射波长变化的物理机理, 采用 Dinu^[18] 给出的理论模型进行讨论. 双光子吸收系数定义为由双光子跃迁引起的单位体积中吸收能量的比率, 表达式为

$$\beta(\omega) = \frac{W_2 \times 2\hbar\omega}{I^2 V}. \quad (3)$$

其中 W_2 是双光子跃迁率, $\hbar\omega$ 为光子能量, I 是激发光强, V 是体积. 利用能量守恒定律 $\delta(E_c(\mathbf{k}_c) - E_v(\mathbf{k}_v) - 2\hbar\omega \pm E_{\text{ph}})$, 以及动量守恒 $\mathbf{k}_c = \mathbf{k}_v \pm \mathbf{Q}$ 关系, W_2 可在微扰理论框架下由计算得出. (3) 式的最后表达形式为^[18]

$$\begin{aligned} \beta(\omega) &= \frac{Z_A^2 E_{\text{ph}} (2N_{K_X} + 1 \pm 1)}{8\rho c_s^2 E_{\text{ig}}^3} \left(\frac{m_c^3}{m_v} \right)^{\frac{1}{2}} \\ &\times \left\{ \frac{128e^4}{\pi^3 \hbar^3 (\epsilon_0 n c)^2} \times \int_0^1 dx (1-x)^{\frac{1}{2}} x^{\frac{1}{2}} \right. \\ &\times \left[(1-x)^{\frac{1}{2}} + x^{\frac{1}{2}} \left(\frac{m_v}{m_c} \right)^{\frac{1}{2}} \right]^4 \left. \right\} \\ &\times \left(\frac{2\hbar\omega \mp E_{\text{ph}}}{E_{\text{ig}}} - 1 \right)^4 / \left(\frac{2\hbar\omega}{E_{\text{ig}}} \right)^7 \\ &\equiv C_2 F_2 \left(\frac{2\hbar\omega}{E_{\text{ig}}} \right) \end{aligned} \quad (4)$$

其中 $F_2 \left(\frac{2\hbar\omega}{E_{\text{ig}}} \right) = \left(\frac{2\hbar\omega \mp E_{\text{ph}}}{E_{\text{ig}}} - 1 \right)^4 / \left(\frac{2\hbar\omega}{E_{\text{ig}}} \right)^7$, Z_A 为声子形变势, $\pm E_{\text{ph}}$ 为考虑到吸收和发射的声子, N_{K_X} 为声子占据数, ρ 是密度, c_s 是声速, m_c 和 m_v 分别为电子和空穴的有效质量. 这些参数的数值可从文献[18]中获得. 由(4)式可知, 双光子吸收系数的频率特性由 $F_2 \left(\frac{2\hbar\omega}{E_{\text{ig}}} \right)$ 函数决定, 即不同光子能量下的跃迁矩阵元和能量守恒定律导致. 将参数 C_2 作为可调参数, 利用(4)式对图 3 中的实验数据进行拟合,

结果以实线示于图 3 中. 可以看出: 当光子能量在 0.689—0.855 eV 范围内, 理论曲线与实验数据符合较好, 双光子吸收系数随入射光子能量的增加而增大; 当光子能量大于 0.855 eV 后, 实验数据中双光子吸收系数出现饱和性, 这可以归结为由二极管光伏信号的饱和导致. 拟合得到 C_2 值为 310, 约为 Dinu 理论模型^[18] 计算值的 3 倍左右. 产生这种差异的机制尚不明确, 其中一种可能的原因是由于使用 Dinu 理论模型计算双光子吸收跃迁率时所采用的量级化近似, 以及模型中所用到的某些物理参数的不确定性所导致. 为减小这种差别, 应该将硅能带的非抛物线性和复杂的声子色散曲线考虑进来^[18].

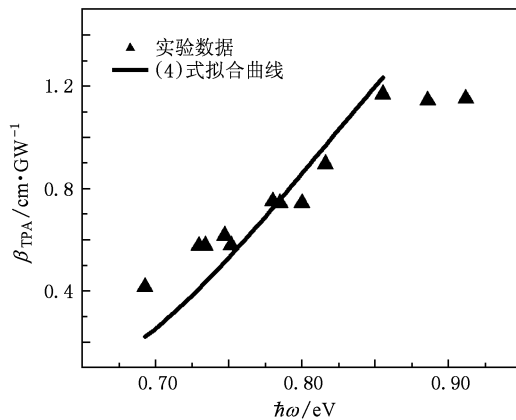


图 3 硅间接跃迁双光子吸收系数谱

此外, 本文也将以前文献报道的高能端的双光子吸收系数同本实验结果进行了对比. Reitze^[10] 所报道的利用抽运-探测实验方法测量到高光子能量

范围 1.975 eV (0.63 μm)—2.312 eV (0.54 μm) 的双光子吸收系数为 4.7—39.5 cm/GW , 比本文报道的 0.689—0.912 eV 范围内的双光子吸收系数 0.42—1.17 cm/GW 大十几倍. 这种量级上的差别归因为: 与单光子间接跃迁率小于直接跃迁率类似, 双光子吸收的间接跃迁率也小于直接跃迁率, 即: 电子在高端的双光子吸收是 k 空间 Brillouin 区内 Γ 点处的直接跃迁, 而在低能端的双光子吸收为声子辅助下从 Γ 点到 X 点附近能谷中的间接跃迁, 这直接导致了双光子系数在两个能量区间上的差异.

4. 结 论

本文利用高功率波长可调谐的脉冲激光器测量了硅的双光子吸收谱. 采用 pn 结等效电容充放电模型, 从脉冲光伏信号峰值随入射光强的变化关系中提取出了双光子吸收系数. 当入射光子能量从 0.689 eV 增加到 0.912 eV 时, 从价带激发的电子可以占据更多的导带量子态, 这导致双光子吸收系数相应地从 0.42 cm/GW 增大至 1.17 cm/GW , 增幅达 2.79 倍. 1.5 μm 处的双光子吸收系数为 $\beta_{\text{TPA}} = 0.9 \text{ cm}/\text{GW}$, 与已报道的同一波长下的部分实验结果符合较好. 从理论计算上定量解释了双光子吸收系数谱的这种频率特性. 虽然高能端直接跃迁的双光子吸收系数已经有了相关报道, 但对于硅基光电器件而言, 间接跃迁的光电响应比直接跃迁的光电响应更具实际应用价值, 本文的结果补充了低能端双光子吸收谱实验数据, 这对于硅基非线性光学器件的设计有着比较重要的意义.

[1] Murayama M, Nakayama T 1994 *Phys. Rev. B* **49** 5737
 [2] Yang G, Chen Z H 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1182 (in Chinese) [杨光、陈正豪 2007 物理学报 **56** 1182]
 [3] Zhu L, Yang W G, Xu L L, Chen A D, Wang W, Cui Y P 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 569 (in Chinese) [朱利、杨文革、徐玲玲、陈安定、王文、崔一平 2007 物理学报 **56** 569]
 [4] Mizrahi V, Delong K W, Stegeman G I, Saifi M A, Anderjco M J 1989 *Opt. Lett.* **14** 1140
 [5] Yu B L, Pu H J, Wu X C, Zhang G L, Tang G Q, Chen W J, Zhu C S, Gan F X 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 320 (in Chinese) [余保龙、卜宏建、吴小春、张桂兰、汤国庆、陈文驹、朱从善、干福熹 1999 物理学报 **48** 320]

[6] Liu C H, Chen C Y, Ma B K 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2022 (in Chinese) [刘翠红、陈传誉、马本坤 2002 物理学报 **51** 2022]
 [7] Jiang J, Li N, Chen G B, Lu W, Wang M K, Yang X P, Wu G, Fan Y H, Li Y G, Yuan X Z 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1403 (in Chinese) [江俊、李宁、陈贵宾、陆卫、王明凯、杨学平、吴刚、范耀辉、李永贵、袁先漳 2003 物理学报 **52** 1403]
 [8] Tsang H K, Wong C S, Liang T K, Day I E, Roberts S W, Harpin A 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 416
 [9] Rieger G W, Virk K S, Young J F 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 900
 [10] Reitze D H, Zhang T R, Wood W M, Downer M C 1990 *J. Opt. Soc. Am. B* **7** 84

- [11] Folliot H, Lynch M, Bradley A L, Dunbar L A, Hegarty J, Donegan J F, Barry L P, Roberts J S, Hill G 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 1328
- [12] Garcia H, Kalyanaraman R 2006 *J. Phys. B: Mol. Opt. Phys.* **39** 2737
- [13] Miragliotta J, Wickenden D K 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 2095
- [14] Cui H Y, Li Z F, Liu Z L, Wang C, Chen X S, Hu X N, Ye Z H, Lu W 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 021128
- [15] Cui H Y, Li Z F, Li Y J, Liu Z L, Chen X S, Lu W, Ye Z H, Hu X N, Wang C 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 238 (in Chinese) [崔昊杨、李志锋、李亚军、刘昭麟、陈效双、陆卫、叶振华、胡晓宁、王 莞 2008 物理学报 **57** 238]
- [16] Dinu M, Quochi F, Garcia H 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 2954
- [17] Krishnamurthy S, Nashold K, Sher A 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 355
- [18] Dinu M 2003 *IEEE J. Quantum Electronics.* **39** 1498

Two-photon absorption coefficient spectra of indirect transitions in silicon*

Cui Hao-Yang^{1)2)†} Li Zhi-Feng²⁾ Ma Fa-Jun²⁾ Chen Xiao-Shuang²⁾ Lu Wei²⁾

1) (School of Computer Science and Information Engineering, Shanghai University of Electric Power, Shanghai 200090, China)

2) (National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

(Received 18 July 2009; revised manuscript received 19 April 2010)

Abstract

The two-photon absorption coefficient spectra of indirect transitions in silicon have been measured using a picosecond Nd:YAG pulsed laser pumped optical parametric generator, whose wavelength being tunable. By employing the pulsed laser with the photon energy less than the indirect energy gap of silicon, the photovoltaic response between two electrons of the silicon photovoltaic diode has been detected significantly. The peak intensity of the pulsed photovoltaic response shows a quadratic dependence on the incident intensity. This suggests a typical two photon absorption process. A relationship between the pulsed photovoltaic response and the incident intensity has been established with an equivalent RC circuit model to derive the two-photon absorption coefficient, and the spectra can also be obtained by turning the incident wavelengths. The results show that when the incident photon energy change from 0.689 eV to 0.912 eV, the two-photon absorption coefficient increase form 0.42 cm/GW to 1.17 cm/GW. The mechanism for the two-photon absorption coefficient increasing with the incident photon energy can be attributed to the electrons excited from valance band finding an increasing availability of conduction-band states as the photon energy increase from $E_{ig}/2$ to near E_{ig} . This photon frequency dependence of the two-photon absorption coefficient has been fairly interpreted by the Dinu model.

Keywords: two-photon absorption, pn junction, photovoltaic response, indirect transition

PACC: 4265, 7230, 7280C, 7340J

* Project supported by the Innovation Program of Shanghai Municipal Education Commission of China (Grant No. 10YZ158), the Shanghai College Foundation for Excellent Young Teachers of China (Grant No. SDI08025).

† E-mail: cuihy@mail.sitp.ac.cn