

使用太赫兹快速探测器测量硅少数载流子寿命

张 钊, 陈颢宇, 田 震

(天津大学 精密仪器与光电子工程学院 光电信息技术教育部重点实验室
太赫兹波研究中心, 天津 300072)

摘 要: 利用脉冲触发信号在半导体中产生非平衡态载流子的方式, 提出一种使用太赫兹连续源和超快速响应探头测量半导体少数载流子寿命的方法, 用于表征半导体的瞬态载流子动力学过程。根据上述设计原理及思路, 以泵浦光作为周期性激励信号, 搭建出一套工作时间窗口为纳秒到秒量级, 时间精度在纳秒量级的非接触式半导体少数载流子寿命测量系统, 具有装置简单、操作方便、成本低廉等优点。使用搭建的系统对不同掺杂类型、不同掺杂浓度、不同厚度单晶硅的非平衡态少数载流子寿命进行测量。最后, 通过改变泵浦光单脉冲能量, 对单晶硅光生载流子寿命进行测量, 结果表明单晶硅少数载流子寿命随着泵浦光能量的增大而变长。该系统所实现的宽工作窗口、高时间精度太赫兹快速过程的探测, 可应用于太赫兹领域的快速成像和快速生物响应探测。

关键词: 太赫兹; 光泵; 单晶硅; 少数载流子寿命

中图分类号: O473 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA201948.0919003

Measurement of minority carrier lifetime in silicon by high speed terahertz detector

Zhang Zhao, Chen Xieyu, Tian Zhen

(Center for Terahertz Waves, College of Precision Instrument and Optoelectronics Engineering, and the Key Laboratory of Optoelectronics Information and Technology (Ministry of Education), Tianjin University, Tianjin 300072)

Abstract: Using pulse trigger signal to generate non-equilibrium carriers in semiconductor, a method for minority carrier lifetime mapping of semiconductor was proposed, with the aid of a terahertz continuous wave source and an ultrafast-response probe, which can apply for characterizing transient carrier dynamics in semiconductor. Based on the above-mentioned design principles, a non-contact minority carrier lifetime measuring system was set up by using the optical pump as the periodic excitation, whose time window was from nanosecond to second and temporal resolution was the order of nanosecond. The system owned various advantages, such as simple device, convenient operation and low cost. The non-equilibrium minority carrier lifetime of monocrystalline silicon with different doping types, different doping concentration, and different thickness were measured by using our system. Finally, the photo-generated carrier lifetime of the monocrystalline silicon was measured through changing the optical pump power. Result shows that the

收稿日期: 2019-05-05; 修订日期: 2019-06-03

基金项目: 国家重点研发计划(2017YFA0701004); 国家自然科学基金(61722509, 61675145, 61735012)

作者简介: 张钊(1994-), 女, 硕士生, 主要从事太赫兹器件及系统方面的研究。Email: zz0608@tju.edu.cn

导师简介: 田震(1981-), 男, 教授, 硕士生导师, 博士, 主要从事太赫兹器件及系统方面的研究。Email: tianzhen@tju.edu.cn

minority carrier lifetime of monocrystalline silicon increases with the enhancement of pump power. The wide-working-window and high-time-resolution detection of terahertz fast processes, which is realized by the proposed system, can be applied for the fast imaging and rapid bio-response detection at the terahertz range.

Key words: terahertz; optical pump; monocrystalline silicon; minority carrier lifetime

0 引言

在“电子设备无处不在”的 21 世纪,半导体材料的改进和优化对于解决生产成本、环境污染等问题有重要的意义。硅(Silicon)已经成为光电子学领域应用广泛的半导体材料^[1-3]。现阶段有很多表征半导体光电特性的方法,例如表面光伏法(Surface photovoltaic)^[4]、开路电压衰减法(Open circuit voltage decay)^[5]等,这些方法需要与待测样品进行电接触,测量方式复杂,不便于实时原物测量。另一种常用方式是基于热成像技术的载流子密度成像法(Carrier density imaging)^[6-7],以波长范围在 5 μm 以下的热辐射电磁波来探测样品中光生载流子,然而光电材料在这一波长范围内的吸收率极低,限制了探测结果的准确性。上述方法都属于表征光电材料稳态特性的方法。然而,对半导体瞬态响应的探测分析,也是研究瞬态载流子动力学和光电材料性质的一种重要工具,是推动半导体元器件制备和创新的基础。瞬态动力学性质的表征为深入研究光电材料工作原理提供依据,为进一步优化材料的功能特性奠定基础。

近些年,光泵太赫兹探测(Optical-pump terahertz-probe),一种非接触式无损探测太赫兹瞬态吸收光谱(Terahertz transient absorption spectroscopy)的方法,成为电磁领域和光谱学领域的研究热点,被广泛应用于研究半导体中载流子动力学过程^[8-11]。使用泵浦光作为激励,待测样品中产生的光生载流子通过能带填充,带隙重整,陷阱填充以及载流子吸收等一系列作用影响瞬态光电导率。由于太赫兹波的吸收与样品内部电导率的变化存在函数关系,通过对瞬态响应光谱中衰减信号的处理,可以得到半导体内载流子的寿命、浓度、迁移率等材料信息,帮助研究电子捕获、电子空穴复合、扩散现象等超快动力学过程。

但是常规的光泵太赫兹探测法仍存在一些局限性。由于探测光谱的时间响应窗口受泵浦光和探测

脉冲之间时间延迟调控的影响,纳秒及纳秒量级以上的延迟是不可能单纯靠增加光学延迟线的长度来实现。因此,使用光学延迟线的太赫兹瞬态响应光谱系统仅能实现时间窗口较窄的光谱探测(皮秒到纳秒),严重制约半导体中纳秒到微秒甚至若干秒时间范围内的动力学过程的研究。纳秒到微秒时间窗口的瞬态吸收光谱探测可通过同步一台飞秒激光器(泵浦光源)和一台纳秒超连续激光器(探测光源)实现,然而,在纳秒时间精度内同步两台激光器对技术要求极高,且搭建成本高,系统光路复杂,往往需要搭配使用高精度电子同步延时器件和设计反馈回路,调试过程繁复,维护检修困难^[12-14]。现在比较成熟的测量宽时间窗口半导体载流子寿命的方法是时间分辨荧光光谱法^[15-17],可实现皮秒到秒量级,皮秒时间精度的光生载流子寿命测量。这种方法成本相对较高,需要使用飞秒激光器、光谱仪、高精度窗口采样等设备。而且,载流子复合过程除电子空穴复合辐射荧光外,还存在非辐射复合,因此,在物理原理上限制了使用荧光光谱测量少数载流子寿命的精确性。

1 系统搭建

1.1 设计思路

基于上述研究背景的介绍及分析,现提出一种可表征纳秒到秒时间响应的瞬态载流子动力学过程的太赫兹连续源探测法,原理如图 1 所示。以太赫兹连续波激光器作为探测光源,利用脉冲型触发信号在半导体中产生非平衡态载流子,使用超快速响应太赫兹探头作为太赫兹光电探测器,接收太赫兹信号,探测待测样品受激前后太赫兹透射信号的变化情况。对所得太赫兹信号的观测及数据处理,有助于研究半导体内非平衡态载流子动力学过程。作为激发单元的周期性触发信号,可以使用激光脉冲激发半导体,也可以采用电脉冲信号。根据不同半导体、光电材料的瞬态动力学特性,还可以通过外加周期

性变化的磁场,周期性改变的应力场,周期性变化的温度控制等方式对材料进行激励,实现激发态吸收的测量,进而分析研究材料中电子空穴复合过程、能量转移过程等动力学现象。

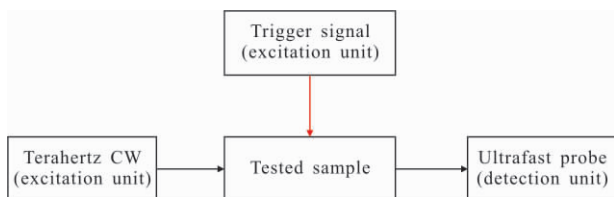


图 1 太赫兹瞬态透射光谱系统设计原理

Fig.1 Design principle of transient transmission spectroscopy system

1.2 实验系统

基于 1.1 节中所述的探测系统设计原理,以光泵浦作为激励源,搭建了一套光泵-太赫兹可测量半导体纳秒到秒量级少数载流子寿命的系统,装置示意图如图 2 所示。探测光源为 Terasense 公司生产的 100 GHz 太赫兹连续波激光器。泵浦光源为 Coherent 公司生产的 Legend Elite Duo-USP-1K 的放大级激光器,输出的中心波长 800 nm,重复频率 1 kHz,脉冲宽度小于 50 fs,输出的最大单脉冲能量为 7 mJ。超快太赫兹光电探测器为 Terasense 公司生产的响应时间 150 ps 量级,工作带宽 0.05~0.7 THz 的超快速探头。示波器由 Agilent Technologies 公司生产的 InfiniiVision DSO-X 3104A,带宽为 1 GHz,最大采样率为 5 GSa/s,时间分辨率为纳秒量级(最大时间分辨率可达 0.2 ns)。

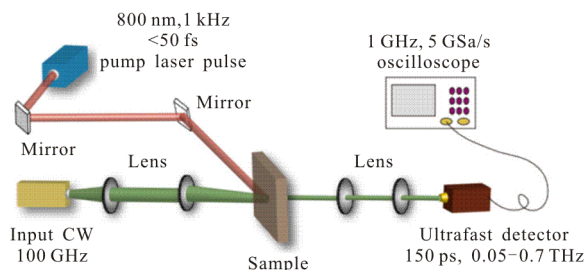


图 2 太赫兹瞬态透射光谱系统装置示意图

Fig.2 Schematic of terahertz transient transmission spectroscopy system

探测光束由连续源输出空间自由光,经过短焦透镜组准直聚焦到样品表面,太赫兹波经待测样品吸收后,透射的太赫兹光束被短焦透镜组准直聚焦

后由超快速响应探头接收,数字示波器将探头所接收的太赫兹电信号转化为屏幕上可直接观测的信号瞬时变化曲线。泵浦光通过平面镜调整光路倾斜入射到样品表面,泵浦束光斑略大于探测束光斑。泵浦光入射后,通过示波器实时观测经待测样品吸收后的太赫兹瞬态透射信号。

2 实验

2.1 测量样品

实验测量所用的电子级高纯单晶硅样品均由赛驰(宁波)电子科技有限公司提供。实验共测量了不同掺杂类型,不同掺杂浓度,不同厚度的硅片共计 5 个样品,样品横截面均为 1 cm×1 cm 的正方形,晶体解理面<100>。样品 1 为单抛 N 型高阻硅,电阻率大于 $1 \times 10^4 \Omega \cdot \text{cm}$,厚度为 502 μm ;样品 2 为单抛 P 型硅,电阻率为 30~150 $\Omega \cdot \text{cm}$,厚度为 519 μm ;样品 3 为单抛 N 型硅,电阻率为 30~150 $\Omega \cdot \text{cm}$,厚度为 524 μm ;样品 4 为单抛 P 型硅,电阻率为 2 000~5 000 $\Omega \cdot \text{cm}$,厚度为 503 μm 。样品 5 为双抛 N 型高阻硅,电阻率大于 $1 \times 10^4 \Omega \cdot \text{cm}$,厚度为 250 μm 。

2.2 结果与分析

以待测样品无光泵条件下的太赫兹透射信号作为参考,从示波器导出光泵前后同一样品的太赫兹电信号瞬时变化曲线,做归一化处理,得到样品相应的太赫兹瞬态响应曲线:同为 N 型掺杂,电阻率不同的样品 1 和 3 的结果如图 3 所示;同为 P 型掺杂,电阻率不同的样品 2 和 4 的结果如图 4 所示;电阻率相同,不同掺杂类型的样品 2 和 3 的结果如图 5 所示;相同掺杂类型,电阻率相同,硅片厚度不同的样品 1 和 5 的结果如图 6 所示。此时,泵浦光的单脉冲能量为 3.5 mJ。文中,非平衡少数载流子寿命(光生载流子寿命)定义为测量所得太赫兹信号瞬态响应曲线的指数衰减宽度^[14]。

由图 3 曲线可以观测到,样品 3 经光泵激发后,非平衡态载流子经弛豫过程回到平衡态所经历的时间比样品 1 所需时间更长。根据文中所定义的载流子寿命可计算出,样品 1 的非平衡少数载流子寿命为 $\tau_1=66.5 \mu\text{s}$,样品 3 的非平衡少数载流子寿命为 $\tau_3=52.5 \mu\text{s}$ 。同为 N 型掺杂的单晶硅,电阻率大的样品,光生载流子(主要为空穴,空穴为少子)寿命长。

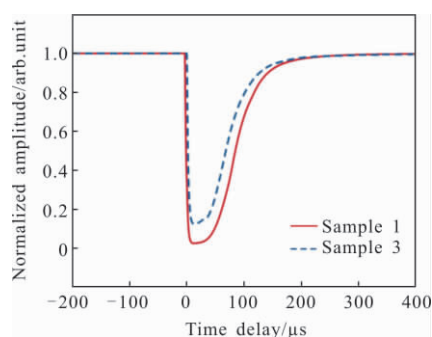


图 3 实验所得 N 型掺杂,电导率不同单晶硅样品的太赫兹瞬态响应曲线

Fig.3 Terahertz transient response curves of measured N-type doped monocrystal silicon with different conductivities

由图 4 曲线可计算得到,样品 2 的非平衡少数载流子寿命为 $\tau_2=35.5 \mu\text{s}$,样品 4 的非平衡少数载流子寿命为 $\tau_4=38.5 \mu\text{s}$ 。同为 P 型掺杂的单晶硅,电阻率大的样品,非平衡载流子(主要为电子,电子为少数)寿命长。但相较于图 3 中电阻率对 N 型掺杂单晶硅中光生载流子寿命的影响,光泵条件下,P 型硅的光生载流子寿命受电阻率的影响明显较弱。综合图 3 和图 4 所的结论,做一定程度的推广,即单晶硅的电阻率越大,同一光泵条件下,硅中光生载流子(少数)寿命越长。

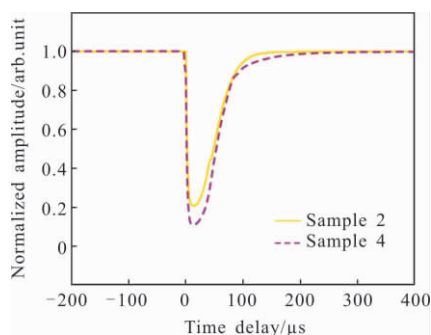


图 4 实验所得 P 型掺杂,电导率不同单晶硅样品的太赫兹瞬态响应曲线

Fig.4 Terahertz transient response curves of measured P-type doped monocrystal silicon with different conductivities

由图 5 曲线可观测到,样品 3 中非平衡载流子的弛豫时间比样品 2 更长。相同电阻率的单晶硅,在相同光泵条件下,N 型掺杂硅中的光生载流子(空穴)寿命长于 P 型掺杂硅中的光生载流子(电子)寿命。

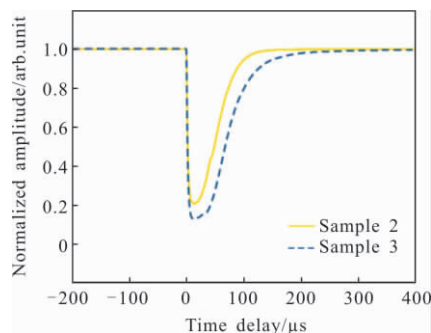


图 5 实验所得相同电导率,不同掺杂类型单晶硅样品的太赫兹瞬态响应曲线

Fig.5 Terahertz transient response curves of measured monocrystal silicon with the same conductivity and different doped types

由图 6 曲线可观测到,硅片较厚的样品 1 中光生载流子弛豫时间远远长于厚度较薄的样品 2 中光生载流子弛豫时间。由测量结果计算可得,样品 5 的非平衡少数载流子寿命为 $\tau_5=10.5 \mu\text{s}$ 。相同电导率的 N 型掺杂单晶硅,具有相同的泵浦横截面积,厚度越薄,硅中光生载流子寿命越短。

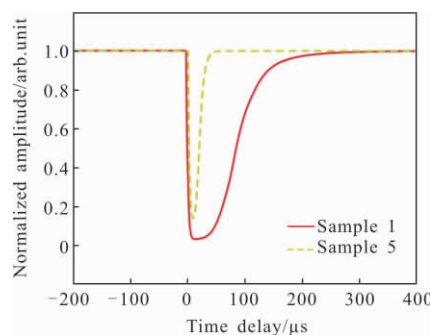


图 6 实验所得 N 型掺杂,电导率相同,厚度不同单晶硅样品的太赫兹瞬态响应曲线

Fig.6 Terahertz transient response curves of measured N-type doped monocrystal silicon with the same conductivity and different thicknesses

最后,探究泵浦光脉冲能量对单晶硅光生载流子寿命的影响,选取样品 5 作为实验对象。测量并记录,同一实验条件下,泵浦光的单脉冲能量为 3.5、3、2、1、0.5 mJ 以及无光泵时,待测样品的太赫兹瞬态响应曲线。选取无光泵状态下样品 5 的太赫兹瞬态响应结果作为参考,对不同泵光能量下的实验所得结果做归一化处理,如图 7 所示。由图 7 曲线可观察到,随着泵光能量的减小,待测样品的光生载流子寿命也随之变短。推导提取当泵光单脉冲

能量为 3.5、3、2、1、0.5 mJ 时的光生载流子寿命, 分别为 10.5、10、9、7.5、6 μs 。

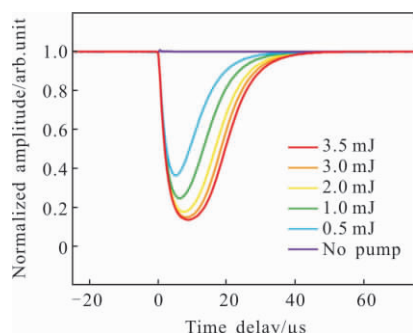


图 7 实验所得不同泵光能量条件下, 单晶硅样品 5 的太赫兹瞬态响应曲线

Fig.7 Terahertz transient response curves of monocrystal silicon sample 5 under different pump powers

如图 8 所示, 当单脉冲能量从 3 mJ 减小到 2 mJ 时, 光生载流子寿命的变化量 $\Delta\tau_{\alpha}=1 \mu\text{s}$; 2 mJ 减小到 1 mJ 时, $\Delta\tau_{\beta}=1.5 \mu\text{s}$; 1 mJ 减小到 0.5 mJ 时, $\Delta\tau_{\gamma}=1.5 \mu\text{s}$ 。即单晶硅中光生载流子寿命的变化速度随着泵光能量的减小而加快。

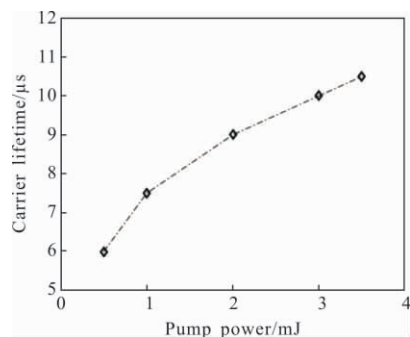


图 8 实验所得单晶硅样品 5 在不同泵光能量下的载流子寿命

Fig.8 Carrier lifetime of of monocrystal silicon sample 5 under different pump powers

3 结论

提出一种可用于测量研究纳秒到秒时间响应的瞬态载流子动力学过程的方法, 并根据该方法搭建出一套纳秒级时间分辨率的光泵-太赫兹连续源探测的瞬态响应信号测量系统。该系统装置简单, 操作方便, 且可以实时直观观测所得到的瞬态响应信号变化情况。利用该系统测量了多个单晶硅样品的光生载流子寿命。实验结果显示, 同一掺杂类型(不论

P 型还是 N 型), 厚度相近, 电阻率大的硅少数载流子寿命更长, 且电阻率对 N 型硅少数载流子寿命的影响更大; 电阻率相同, 厚度相近, N 型掺杂的少数载流子寿命更长; 电阻率相同的 N 型硅, 厚度越薄, 少数载流子寿命越短。同时, 基于对不同泵光能量下少数载流子寿命的测量, 表明单晶硅中光生载流子寿命随泵光能量的减小而变短, 且变化速度随泵光能量的减小而加快。文中所提出的研究方法以及搭建的探测系统可用于对太赫兹快速响应或反应过程的研究, 实现宽工作窗口、高时间精度的快速响应探测, 在太赫兹快速成像和快速生物响应的研究领域具有潜在的应用前景。

参考文献:

- [1] Reed G T, Mashanovich G, Gardes F Y, et al. Silicon optical modulators [J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(8): 518-526.
- [2] Peng F, Su Y, Zhong Y, et al. Silicon nanomaterials platform for bioimaging, biosensing, and cancer therapy [J]. *Accounts of Chemical Research*, 2014, 47(2): 612-623.
- [3] Soref R. Silicon photonics: a review of recent literature [J]. *Silicon*, 2010, 2(1): 1-6.
- [4] Goodman A M. A method for the measurement of short minority carrier diffusion lengths in semiconductors [J]. *Journal of Applied Physics*, 1961, 32(12): 2550-2552.
- [5] Bruno C J, Martinez Bogado M G, Plá J C, et al. Determination of the minority carrier lifetime in solar cells: a novel biased OCVD technique [J]. *Physica Status Solidi A*, 1999, 174(1): 231-238.
- [6] Isenberg J, Riepe S, Glunz S W, et al. Carrier density imaging (CDI): a spatially resolved lifetime measurement suitable for in-line process-control [C]//29th IEEE Photovoltaic Specialists Conference (PVSC), 2002: 266-269.
- [7] Isenberg J, Riepe S, Glunz S W, et al. Imaging method for laterally resolved measurement of minority carrier densities and lifetimes: Measurement principle and first applications [J]. *Journal of Applied Physics*, 2003, 93(7): 4268-4275.
- [8] George P A, Strait J, Dawlaty J, et al. Ultrafast optical-pump terahertz-probe spectroscopy of the carrier relaxation and recombination dynamics in epitaxial graphene [J]. *Nano Letters*, 2008, 8(12): 4248-4251.
- [9] Kar S, Su Y, Nair R, et al. Probing photoexcited carriers in a few-layer MoS₂ laminate by time-resolved optical pump-

- terahertz probe spectroscopy [J]. *ACS Nano*, 2015, 9(12): 12004–12010.
- [10] Parkinson P, Dodson C, Joyce H J, et al. Noncontact measurement of charge carrier lifetime and mobility in GaN nanowires [J]. *Nano Letters*, 2012, 12(9): 4600–4604.
- [11] Strait J H, Wang H, Shivaraman S, et al. Very slow cooling dynamics of photoexcited carriers in graphene observed by optical-pump terahertz-probe spectroscopy [J]. *Nano Letters*, 2011, 11(11): 4902–4906.
- [12] Magusara V K, Funkner S, Niehues G, et al. Low temperature-grown GaAs carrier lifetime evaluation by double optical pump terahertz time-domain emission spectroscopy [J]. *Optics Express*, 2016, 24(23): 26175–26185.
- [13] Beard M C, Turner G M, Schmittenmaer C A. Sub-picosecond carrier dynamics in low-temperature-grown GaAs as measured by time-resolved THz spectroscopy [J]. *Journal of Applied Physics*, 2001, 90(12): 5915–5923.
- [14] Neu J, Rahm M. Terahertz time domain spectroscopy for carrier lifetime mapping in the picosecond to microsecond regime [J]. *Optics Express*, 2015; 23(10): 12900–12909.
- [15] Underwood D F, Kippeny T, Rosenthal S J. Ultrafast carrier dynamics in CdSe nanocrystals determined by femtosecond fluorescence upconversion spectroscopy [J]. *Journal of Physical Chemistry B*, 2001, 105(2): 436–443.
- [16] Ramanathan S, Patibandla S, Bandyopadhyay S, et al. Fluorescence spectroscopy of electrochemically self-assembled ZnSe and Mn:ZnSe nanowires [J]. *Nanotechnology*, 2008, 19(19): 195601.
- [17] Yao G, Lu L, Gui M, et al. Investigation of ultrafast dynamics of CdTe quantum dots by femtosecond fluorescence up-conversion spectroscopy [J]. *Chinese Physics B*, 2012, 21(10): 107801.