

⑤ 343-346

# InAs/GaAs 低维结构中载流子快速俘获过程的研究\*

李 晴 徐仲英

(中国科学院半导体研究所, 超晶格国家重点实验室, 北京, 100083)

葛惟昆

(香港科技大学物理系, 香港特别行政区, 九龙)

TN304, 22

**摘要** 用简并激发-探测技术研究了 77K 温度下 InAs/GaAs 量子点中载流子快速俘获和弛豫过程。在瞬态反射谱测量中, 除观察到与 GaAs 有关的弛豫过程外(时间常数约为 1ps), 还观察到一个时间常数为几个至 20ps 的反射率上升过程, 提出了一个物理模型, 表明上述上升过程与光致载流子被 InAs 层快速俘获过程有关, 并由此得到载流子的俘获时间, 俘获时间随载流子浓度增加而减小。

**关键词** 超快光谱, 低维结构, II-V 族半导体。

载流子, 快速俘获过程

## STUDY OF RAPID CARRIER CAPTURE AND RELAXATION IN InAs/GaAs HETEROSTRUCTURES

LI Qing XU Zhong-Ying

(National Laboratory of Superlattices & Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

GE Wei-Kun

(Department of Physics, Hong Kong University of Science and Technology, Kowloon, Hong Kong, China)

**Abstract** The rapid carrier capture and relaxation processes in InAs/GaAs quantum dots were studied at 77K by using a simple degenerate pump-probe technique. A rising process was observed in the transient reflectivity, following the initial fast relaxation associated with GaAs bulk matrix, and this rising process was assigned to be related to the carrier capture from the GaAs barriers to InAs layers. The assignment was modeled using Kramers-Kronig relation. By analyzing the rising process observed in the transient reflectivity, the carrier capture time constants were obtained. The measured capture times decrease with the increase of carrier concentration.

**Key words** ultrafast spectroscopy, low-dimension heterostructure, II-V semiconductors.

### 引言

众所周知, MBE 生长的自组织 InAs/GaAs 量子点结构具有非常高的发光效率, 表明 InAs 量子点对载流子有很强的俘获能力。载流子的俘获和弛豫过程无论在物理上还是在应用上都有重要意义。目前实验上已有过一些研究, 但结果比较分散。Sosnowski 等人<sup>[1]</sup>曾用多波长时间分辨透射谱研究了

In<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>As/GaAs 量子点中的载流子弛豫过程, 发现电子子带间的弛豫时间常数为 5.2ps, 对 GaAs 中载流子的俘获时间为 8ps。Ohnesorge 等人<sup>[2]</sup>用条纹相机测量得到的 In<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>As/GaAs 量子点中载流子的俘获和弛豫时间则要慢得多, 约为 50ps。最近 Yuan 等人<sup>[3]</sup>用荧光上转换技术研究了 InAs/GaAs 量子点的载流子弛豫过程, 发现量子点激发态荧光的上升时间比基态荧光上升时间长, Yuan 等用载

\* 国家自然科学基金(编号 69736010、19974045)和国家基础研究重点基金资助项目  
稿件收到日期 1999-11-07, 修改稿收到日期 2000-03-29

\* The project supported by the National Natural Science Foundation (No. 69736010, 19974045) and the State Key Program for Basic Research of China  
Received 1999-11-07, revised 2000-03-29

流子从低能态向高能态的填充来解释这一现象。

本文用简并激发-探测技术研究 InAs/GaAs 低维结构中载流子快速俘获和驰豫过程,在瞬态反射率( $\Delta R/R$ )曲线中,除观察到与 GaAs 有关的驰豫过程外,还观察到一个时间常数大于 20ps 的上升过程.从载流子浓度分布对折射率的影响出发,提出了一个物理模型,表明上述上升过程与光致载流子被 InAs 量子点(量子阱)快速俘获的过程有关,并由此得到载流子的俘获时间,俘获时间与激发强度有关.

## 1 实验

实验所用的 InAs/GaAs 样品由 MBE 生长.在半绝缘(100)GaAs 衬底上以 580°C 的温度淀积约 0.5 $\mu\text{m}$  的 GaAs 缓冲层,再以 450°C 的温度生长不同厚度的 InAs 结构,然后再生长 200Å 的 GaAs 盖层,样品 B 的 InAs 层厚度为 1.0ML,样品 C 的 InAs 层厚度为 2.5ML.生长过程由 RHEED 监测,当 InAs 厚度超过 1.5~1.7 单分子层(ML)的临界厚度时,形成 InAs 量子点结构.实验中我们用 GaAs 外延片(样品 A)作为参照样片.

瞬态反射率的测量采用常规的简并激发-探测技术<sup>[4]</sup>,用掺钛蓝宝石飞秒脉冲激光器作为光源,激光脉冲宽度为 80fs,重复频率 82MHz.激发光和探测光具有相同的能量( $E_{ex} = E_{pr}$ ),探测光与激发光的强度比为 1:10,偏振方向相互垂直以避免干涉现象的影响.激发功率约为 30mW,激光激发的载流子浓度估算约为  $1 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ .为了减小激光本身功率起伏波动的影响采用了差分接收技术, $\Delta R/R$  信号灵敏度可达到  $10^{-4}$ .时间延迟控制系统的时间分辨率可精确到 <1fs.

## 2 实验结果和分析

图 1 所示为 77K 温度下测得的几个样品(包括 GaAs 参照样片)的瞬态反射率( $\Delta R/R \sim f(\Delta t)$ )曲线.激发探测光的波长为 810nm(1.53eV,即 GaAs 带边以上 ~20meV).样品 A 受到激光脉冲激发后,反射率迅速上升,然后又快速下降,对应于 GaAs 中载流子激发和快速驰豫过程<sup>[5]</sup>,驰豫的时间常数 <1ps,驰豫的主要机制为 C-C 散射和 LO 声子散射.

样品 B 和样品 C 在上述迅速上升和下降过程后又出现了一相对较慢的  $\Delta R/R$  上升过程.对  $\Delta R/R$  上升过程用指数函数拟合得到样品 B 和样品 C 的上升时间( $t_r$ )分别为 1.3ps 和 7.8ps.

根据激发-探测实验原理,激发光通过带间吸收

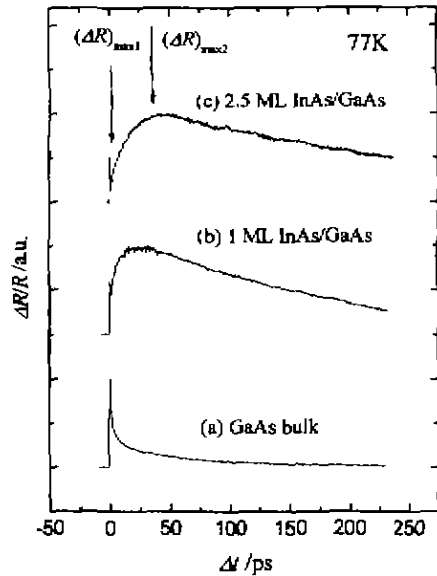


图 1 77K 温度下不同样品的瞬态反射谱,激发探测能量为 1.530eV,即位于 GaAs 带边以上 20meV  
Fig.1 Transient reflectivity traces,  $\Delta R/R$  versus time delay  $\Delta t$  for three different samples at 77K: (a) GaAs bulk, (b) 1ML InAs/GaAs, (c) 2.5ML InAs/GaAs. The samples were excited and probed at 1.530eV, i. e. 20meV above the GaAs bandgap

在导带和价带中产生非平衡载流子,载流子通过 C-C 散射和发射 LO 声子在 ~1ps 内形成可以用温度描述的热力学分布状态<sup>[5]</sup>.光致载流子通过能带填充、带隙重整和自由载流子吸收使带间吸收率产生变化( $\Delta\alpha$ )<sup>[6]</sup>,吸收率( $\Delta\alpha$ )的变化导致折射率也发生变化( $\Delta n$ ),折射率变化( $\Delta n$ )与反射率变化( $\Delta R$ )成正比,即  $\Delta R/R = 4\Delta n/(n^2 - 1)$ <sup>[7]</sup>.

半导体材料的带间吸收率与导带价带中的载流子浓度的关系可以写为<sup>[8]</sup>

$$\alpha(E) \propto (1 - f_c(E_c)) \cdot (1 - f_v(E_b)), \quad (1)$$

式中  $E_c + E_b = E$ .由于导带和价带中存在非平衡载流子, $\alpha(E)$  发生变化.根据 Kramers-Kronig 关系,折射率也将发生变化<sup>[6]</sup>,即

$$\Delta n(E_{pr}, t) \propto P \int_0^\infty \frac{\Delta\alpha(E, t)}{E^2 - E_{pr}^2} dE. \quad (2)$$

$P$  表示主值积分.对于 GaAs 体材料参照样片来说, K-K 积分中的  $\Delta\alpha(E)$  在区间  $[0, \infty]$  上是缓变函数.由于分母  $\{(E)^2 - (E_{pr})^2\}$  的影响,积分函数  $\Delta\alpha(E, t)/(E^2 - E_{pr}^2)$  只有在  $E = E_{pr}$  能量附近才有比较大的数值.以上积分可以近似写成(见图 2(a))

$$\Delta n(E_{pr}, t) \propto P \int_{E_{pr}-A}^{E_{pr}+A} \frac{\Delta\alpha(E, t)}{E^2 - E_{pr}^2} dE. \quad (3)$$

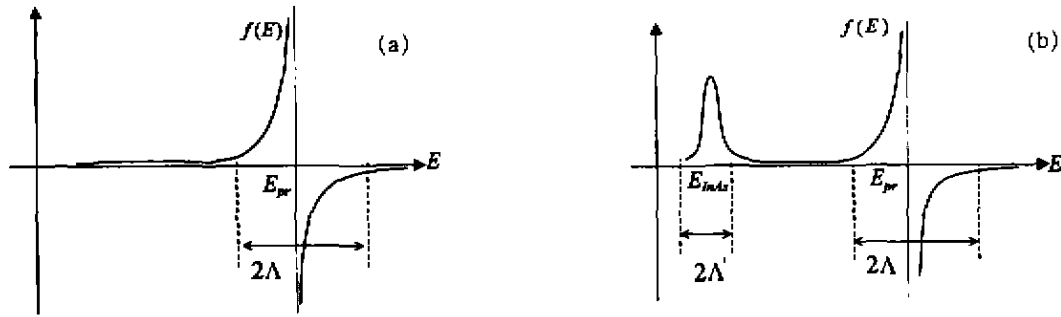


图 2 Kramers-Kronig 关系中的积分函数示意图(横坐标是能量,纵坐标是积分函数  $\Delta\alpha(E)/(E^2 - E_{pr}^2)$  随能量的分布)

(a) GaAs 体材料, (b) InAs/GaAs 异质结

Fig. 2 The integration function  $\Delta\alpha(E)/(E^2 - E_{pr}^2)$  in the Kramers-Kronig relation

(a) GaAs bulk, (b) InAs/GaAs heterostructure

对  $\Delta n(E_{pr})$  的贡献主要来自  $E_{pr}$  能量附近的载流子. 激发-探测实验测量得到的  $\Delta R/R$  反映了探测光能量位置的载流子浓度变化.

在我们研究的 InAs/GaAs 样品中, 覆盖在 InAs 层上的 GaAs 盖层只有 200 Å, 远远小于激光穿透深度 0.5~1 μm, 在激光吸收范围内既有 GaAs, 也有 InAs 薄层. 由于 InAs 层俘获载流子, 使 InAs 能级上的载流子浓度发生较大的变化, 因此 InAs 能级上带间吸收率的变化也很大, 而 GaAs 中的载流子浓度变化并不大. 此时, K-K 积分中对  $\Delta n(E_{pr})$  有贡献的  $\Delta\alpha(E)$  主要来自两个积分区间:  $E_{pr}$  附近能量区域和 InAs 附近能量区域. 这样式(2)可以写成(见图 2(b))

$$\begin{aligned} \Delta n(E_{pr}, t) &\propto P \int_0^\infty \frac{\Delta\alpha(E, t)}{E^2 - E_{pr}^2} dE \approx \\ &P \int_{E_{pr}-\Lambda}^{E_{pr}+\Lambda} \frac{\Delta\alpha(E, t)}{E^2 - E_{pr}^2} dE + \int_{E_{InAs}-\Lambda}^{E_{InAs}+\Lambda} \frac{\Delta\alpha(E, t)}{E^2 - E_{pr}^2} dE \\ &\propto \Delta n_1(t) + \propto \Delta n_2(t). \end{aligned} \quad (4)$$

$\Delta n_1$  是 GaAs 中能量  $E = E_{pr}$  附近的载流子对  $\Delta n(E_{pr}, t)$  的贡献,  $\Delta n_2$  是 InAs 能级上聚积的载流子对  $\Delta n(E_{pr}, t)$  的贡献. 在时间延迟  $t=0$  附近, 激发光激发的载流子集中于  $E_{pr}$  附近,  $\Delta n_1(t)$  达到最大值,  $\Delta n(E_{pr}, t)$  及  $\Delta R$  出现第一个极大值(图 1 中的  $(\Delta R)_{\max 1}$ ); 随着 GaAs 中的载流子被 InAs 俘获, InAs 能级上的载流子浓度增加,  $\Delta n_2(t)$  达到最大值,  $\Delta n(E_{pr}, t)$  及  $\Delta R$  出现第二个极大值(图 1 中的  $(\Delta R)_{\max 2}$ ). 我们观察到的  $\Delta R/R$  的上升过程, 物理上反映了载流子被 InAs 薄层俘获的过程. 因此实验测得的  $\Delta R/R$  上升时间就是载流子的俘获时间常数, 样品 B 和样品 C 的俘获时间常数分别为 1.3 ps 和 7.8 ps.

量子点中的弛豫过程可以通过多声子散射<sup>[9,10]</sup>和俄歇散射<sup>[11,12]</sup>来完成. 俄歇散射作为 C-C 散射, 散射率随载流子浓度增加而增加. 图 3 给出了 1ML InAs/GaAs 样品的俘获时间  $\tau_c$  与激发强度(即载流子浓度)的关系, 可以看到俘获时间  $\tau_c$  随激发功率的增加而减小. 激发强度从 9 mW 增加到 60 mW 时, 其载流子俘获时间  $\tau_c$  从 4.3 ps 减小到 0.6 ps. 样品 C (2.5ML) 具有相同的规律(未给图示). 上述结果表明俄歇散射在载流子的快速俘获过程中起了重要作用, 并由此得到相应的俘获速率为  $5.6 \times 10^{10} \sim 1.6 \times 10^{12}/s$ .

### 3 结论

我们用简并激发-探测技术测量了光生载流子

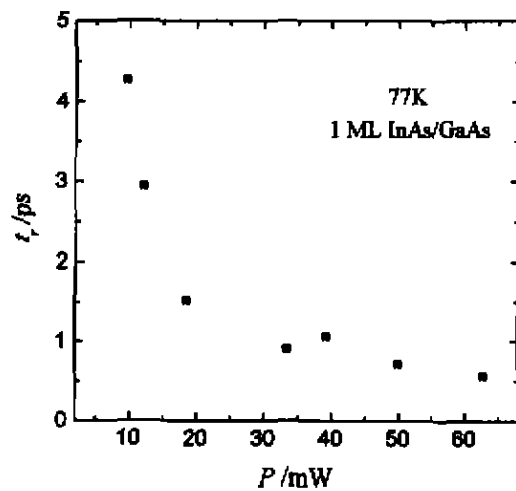


图 3 1ML InAs/GaAs 样品在不同激发强度下的载流子俘获时间  $\tau_c$

Fig. 3 Measured capture time  $\tau_c$  versus the excitation power for 1ML InAs/GaAs sample

被 InAs 薄层俘获的时间过程。在瞬态反射率测量中,除观察到与 GaAs 有关的载流子弛豫外,还观察到一个时间常数为几个到 20ps 的反射率上升过程。我们从载流子分布对折射率的影响出发,提出了一个物理模型,指出  $\Delta R/R$  上升过程与载流子被 InAs 量子点快速俘获过程有关,并由此可直接得到载流子的俘获时间  $\tau_c$ , 俘获时间  $\tau_r$  随载流子浓度的增加而减小。

致谢:感谢中国科学院半导体研究所超晶格国家重点实验室许继宗高级工程师在实验上提供的帮助和英国 Oxford 大学袁之良博士的有益的讨论。

### REFERENCES

- [1] Sosnowski T S, Norris T B, Jiang H, *et al.* Rapid carrier relaxation in  $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}/\text{GaAs}$  quantum dots characterized transmission spectroscopy, *Phys. Rev. B*, 1998, **57**:R9423
- [2] Yuan Z L, Foo E, Ryan J F, *et al.* Time-resolved photoluminescence study on selforganized InAs/GaAs quantum dots embedded in GaAs, *presented on HCIS-11* (in private communication).
- [3] Ohnesorge B, Albrecht M, Oshinowo J, *et al.* Rapid carrier relaxation in self-assembled  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  quantum dots, *Phys. Rev. B*, 1996, **54**: 11532
- [4] Li Qing. Carrier capture and relaxation in InAs/GaAs heterostructures, Master degree thesis, Institute of Semiconductors, CAS, Beijing (李晴. InAs/GaAs 异质结构的载流子复合和弛豫, 硕士学位论文, 中国科学院半导体研究所), 北京, 1999
- [5] Shah Jagdeep. In: *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*, Springer Series 115. Berlin: Springer-Verlag, 1996
- [6] Bennett B R, Soref R A, dal Alamo J A. Carrier-induced change in refractive index of InP, GaAs, InGaAsP, *IEEE. J. Quantum Electron.*, 1990, **26**: 113
- [7] Fischler W, Buchberger P, Hopfel R A, *et al.* Ultrafast reflectivity changes in photoexcited GaAs Schottky diodes, *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**: 2778
- [8] Haug Hartmut, Koch Stephan W. In: *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*, second edition, Singapore: World Scientific, 1993
- [9] Inoshita T, Sakaki H. Electron relaxation in quantum dots; significance of multiphoton processes, *Phys. Rev. B*, 1992, **46**: 7260
- [10] Bockelmann U. Electron relaxation and radiative recombination in semiconductor quantum dots, *Phys. Rev. B*, 1993, **48**: 17637
- [11] Efros A L, Kharchenko V A, Rosen M. Breaking the phonon bottleneck in nanometer quantum dots; role of Auger-like processes, *Solid State Commun.*, 1995, **93**: 281
- [12] Bockelmann U, Egeler T. Electron relaxation in quantum dots by means of Auger process, *Phys. Rev. B*, 1992, **46**: 15574