

GaInNAs 薄膜中深能级弛豫过程的皮秒泵浦-探测研究

马法君, 李志锋, 陈平平, 陆卫

(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)

摘要:应用泵浦-探测方法研究了 GaInNAs 载流子动力学. 差分透射强度随时间变化曲线表明, 深能级中被俘获电子在光学瞬态吸收中起重要作用. 为了模拟 GaInNAs 中光生载流子动力学过程和拟合泵浦-探测实验结果, 采用了一个简化的微分方程模型, 该模型能够解释被深能级俘获电子的弛豫过程, 并可获得弛豫过程的时间常数.

关键词: GaInNAs 薄膜; 深能级; 载流子弛豫过程; 泵浦-探测

中图分类号: O473 **文献标识码:** A

Trapped carrier relaxation in deep level states in GaInNAs: studied with picosecond pump-probe measurements

MA Fa-Jun, LI Zhi-Feng, CHEN Ping-Ping, LU Wei

(National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Shanghai 200083, China)

Abstract: A pump-probe study of carrier dynamics in GaInNAs was carried out. Induced absorption by trapped electrons in deep level states becomes important as inferred from the sign of the transmittance change. A simplified differential equation model has been utilized to simulate photo-generated carrier dynamics in GaInNAs and to fit differential transmission results. The model can interpret the temporal evolution of the trapped carrier density and extract the time constants of the carrier relaxation processes.

Key words: GaInNAs thin films; deep levels; carrier relaxation; pump-probe

PACS: 72.20.Jv

引言

因长波光电器件方面优异的物理性能和潜在的应用价值, GaAs 衬底上生长的 GaInNAs 引起了广泛的重视和研究^[1,2]. 和 GaNP 与 GaNAs 一样, 它也是一种 V 族 N 元素合金半导体材料, 能够生长在 GaAs 衬底上, 是一种波长在 1.3 ~ 1.55 μm 近红外光电二极管和激光器的优良发光材料, 同时 GaInNAs 合金半导体也被看好能够成为多带隙太阳能电池材料. 但是 N 的掺入势必严重影响载流子寿命, 一般载流子寿命随着 N 组分的增加而减小^[4], 因此其载流子动力学的研究对器件设计和深入了解这些材料体系的电子性质都是非常重要的. 相比荧光光谱, 泵浦-探测方式方法能够更为深入地研究材料的不同

能带结构中受激发载流子的性质. Sinning 首先采用泵浦-探测方法研究了 GaNAs, 认为 GaNAs 相比 GaAs, 载流子弛豫减慢是能带结构被剧烈改变的结果^[5]. 本文对自主制备的 GaInNAs 材料进行了泵浦-探测的研究, 发现深能级在动力学过程中起着重要的作用.

1 实验方法

采用皮秒泵浦-探测系统^[6]测量激光诱导下 GaInNAs 透射率随时间变化光谱, 实验装置如图 1 所示. 激发光源采用 Nd:YAG 脉冲激光器输出激光, 激光主要参数: 波长 1064nm, 脉冲宽度 30ps, 重复频率 10Hz. 为了减小零点附近泵浦光与探测光非线性效应产生的相干噪声, 通过格兰-泰勒棱镜和半

收稿日期: 2010-09-01, 修回日期: 2010-10-09

基金项目: 华东师范大学精密光谱科学与技术国家重点实验室资助课题

作者简介: 马法君 (1980-), 男, 河南濮阳人, 博士研究生, 主要研究领域为激光与物质相互作用研究. E-mail: fajunma@hotmail.com.

Received date: 2010-09-01, revised date: 2010-10-07

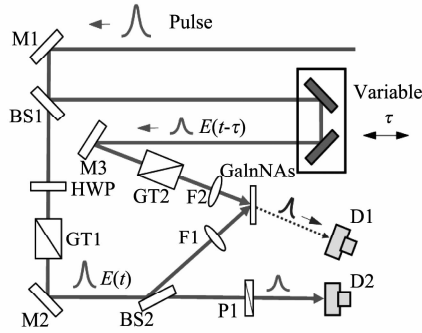


图1 实验装置图,其中 M1 ~ M3 反射镜片,BS1、BS2 分光镜片,F1、F2 凸透镜,GT1、GT2 格兰泰勒棱镜,HWP 半波片,D1、D2 探测器
Fig. 1 Experimental setup of the picosecond pump probe measurement, M1 ~ M3 mirrors, BS1, BS2 splitters, F1, F2 convex lenses, GT1, GT2 Glan Taylor prisms, HWP half wavelength plates, D1, D2 detectors

波片将泵浦光和探测光偏振调整为相互垂直. 利用分子束外延技术在 AXT Epi-Ready GaAs(100) 衬底上生长 70nm 的 AlAs 牺牲层,然后再生长厚度约为 700nm 的 GaInNAs 薄膜,In 和 N 的组分分别为 0.1 和 0.01. 生长完毕后用腐蚀液将 AlAs 腐蚀去除,使 GaInNAs 外延膜剥离后贴到蓝宝石片上. 红外透射测量表明其吸收边在 1.12μm 附近.

2 实验结果与讨论

图 2 是测量得到的差分透射强度随泵浦-探测延迟时间的变化曲线,从中可以清晰地看出透射率变化规律不同于一般文献^[7]中泵浦-探测实验结果:在一般的泵浦-探测透射实验中,透射率在时间零点附近增加到一个极大值,随后以单一指数衰减,并始终保持为正值.而在本文 GaInNAs 材料泵浦-探测实验中存在两个明显不同之处,虽然 A→B 区域透射率也是显著增加,在时间零点增加到一个极大值 B,但是随后 B→C 透射率却急剧减小,透射率减小的过程不是单一指数衰减过程.并且差分透射率也没有像一般实验中一样以正值趋近于零(纵坐标 $\Delta T/T$ 为 0,如图 2 水平虚线所示),而是继续减小,到一个负的极小值(C 点),说明此时的材料的绝对透射率比不加泵浦光时还要小,意味着存在一个额外的吸收过程阻止了探测光的透过.随着延迟时间的增加,C→D 区域是单一指数从极小值弛豫到平衡状态的过程.类似的现象在低温生长 GaAs 薄膜的泵浦-探测实验中也出现过,许多研究者认为额外的吸收过程可能是材料缺陷产生的深能级引起的^[8,9].据此本文采用简化的深能级模型来描述载流子的动力

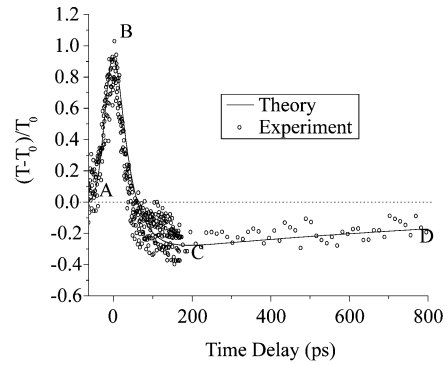


图 2 GaInNAs 差分透射率随时间的变化曲线, $\Delta T/T_0 = (T - T_0)/T_0$,其中 T_0 平衡态透射率, T 为泵浦光激发后透射率.空心点为实验数据,实线为理论模型拟合数据,可以看出存在透射增加和减少两个不同过程
Fig. 2 GaInNAs differential transmission versus time delay, T_0 equilibrium transmission, T transmission of the material after the pumping. Hollow point for the experimental data, solid line for the data fitted by the theoretical model

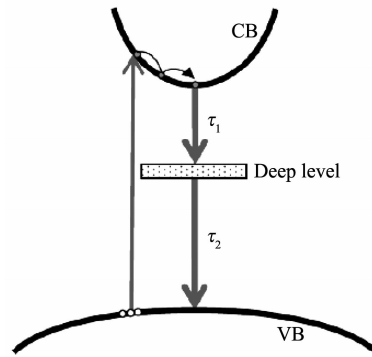


图 3 载流子弛豫过程示意图,载流子被激光泵浦到导带,之后被深能级吸收,并逐渐弛豫到价带
Fig. 3 Schematic diagram of the carrier excitation and relaxations via deep levels

学过程,如图 3 所示,能带图中间包括一个中间态—深能级,能够快速俘获激发电子.

激光入射到 GaInNAs 样品上面以后,将价带电子激发到导带.随着激光脉冲强度的增加,被激发到导带的电子越来越多,材料对激光吸收越来越小,透射率越来越大,如图 2 中 A→B 过程中透射变化,这种情况也称为漂白效应^[10].电子被激发到导带以后,在短时间内达到热化平衡,弛豫到导带底,之后以 τ_1 为时间常数被深能级俘获.由于被深能级俘获的电子相比价带电子更容易吸收光子跃迁,被俘获电子可被探测光再次激发跃迁进入导带造成样品对探测光的吸收率增加,所以这时 GaInNAs 吸收系数比样品平衡状态时还要大,亦即透射率比平衡状态时还要小,形成图 2 中的接近 C 段.与此同时深能

级上的电子通过过程 τ_2 与价带中空穴复合. 随着延迟时间的增加, 能够被再次激发进入导带的载流子的数量逐渐减小, 而驰豫到价带的过程仍然在持续, 因此差分透射率从负的极小值逐渐增加并趋近于零, 亦即非平衡载流子逐渐变为零, 材料透射率也逐渐变为初始时透射率.

材料中的各个光吸收跃迁过程和驰豫过程与载流子浓度相关, 因此采用速率方程组, 结合以上描述的动力学过程和能带模型来定量地理解本实验的结果^[11]. 导带电子浓度随着时间变化速率方程为:

$$\frac{dN_C}{dt} = I(\alpha_D + \alpha_V) - \frac{N_C}{\tau_1}, \quad (1)$$

深能级电子浓度随着时间变化的速率方程为:

$$\frac{dN_D}{dt} = \frac{N_C}{\tau_1} - \frac{N_D}{\tau_2} - I\alpha_D. \quad (2)$$

其中 I 为激光强度, 实验中为脉冲宽度 30ps 的高斯线型激光. N_C 、 N_D 分别为导带、深能级的载流子浓度. α_D 、 α_V 分别为深能级、价带电子对激光的吸收系数. 如图所示 τ_1 、 τ_2 分别载流子从导带到深能级和从深能级到价带的驰豫过程时间常数. 其中方程(1)的右边分别表示深能级的吸收、价带的吸收和导带的驰豫过程, 而方程(2)的右边则分别为导带驰豫、深能级驰豫以及深能级吸收的过程. 由此对透射率变化的实验数据进行拟合, 其结果如图 2 中的实线所示. 可以看到计算结果与实验数据吻合良好, 由拟合参数得到 τ_1 、 τ_2 的数值分别为 12.1ps 和 1.2ns, 意味着在泵浦光激发样品使材料中价带电子被激发到导带上之后, 又在 12.1ps 时间内迅速被深能级俘获, 导致材料的吸收增加, 而在深能级俘获的电子向价带的驰豫过程较为缓慢, 约 1.2ns 以后深能级电子浓度逐步衰减到零的水平.

3 结论

采用皮秒泵浦-探测方法研究了 GaInNAs 材料, 发现存在深能级吸收现象. 采用一个简化的深能级模型对实验结果进行拟合, 获得了载流子从导带驰

豫到深能级和从深能级驰豫到价带过程的时间常数, 代表着非平衡载流子的寿命. 从数值上看, 相对于目前飞秒 THz 产生和探测技术中所采用的低温生长的 GaAs 薄膜而言, 本实验中的 GaInNAs 薄膜的特征驰豫时间分别高出一个量级和 3 个量级, 说明材料中存在着很慢的缺陷中心. 这也许将是目前本薄膜在高速器件的应用中需要解决的一个问题.

REFERENCES

- [1] Kondow M, Uomi K, Niwa A, *et al.* GaInNAs: A novel material for long-wavelength-range laser diodes with excellent high-temperature performance [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1996, **35**(2B):1273—1275.
- [2] Kondow M, Kitatani T, Nakatsuka S, *et al.* GaInNAs: A novel material for long-wavelength semiconductor lasers [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 1997, **3**(3):719—730.
- [3] Geisz J F, Friedman D J, Olson J M, *et al.* Photocurrent of 1 eV GaInNAs lattice-matched to GaAs [J]. *J. Cryst. Growth*, 1998, **195**(4):401—408.
- [4] Buyanova I A, Chen W M, Tu C W. Recombination processes in N-containing III-V ternary alloys [J]. *Solid-State Electronics*, 2003, **47**(3):467—475.
- [5] Sinning S, Dekorsy T, Helm M, *et al.* Reduced subpicosecond electron relaxation in GaN_xAs_{1-x} [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **86**(16):No. 161912.
- [6] Jagdeep Shah, *Ultrafast Spectroscopy of semiconductor and semiconductor nanostructures* [M]. Berlin: Springer, 1999, 13—21.
- [7] Wintner E, Ippen E P. Nonlinear carrier dynamics in Ga_xIn_{1-x}As_yP_{1-y} compounds [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1984, **44**(10):999—1001.
- [8] Yee K J, Lee D, Liu X, *et al.* Optical studies of carrier and phonon dynamics in Ga_{1-x}Mn_xAs [J]. *J. Appl. Phys.*, 2005, **98**(11):No. 113509.
- [9] Siegner U, Fluck R, Zhang G, *et al.* Ultrafast high-intensity nonlinear absorption dynamics in low-temperature grown gallium arsenide [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**(17):2566—2568.
- [10] Shank C V, Auston D H, Parametric coupling in an optically-excited plasma in Ge [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1975, **34**(8):479—481.
- [11] Othonos A. Probing ultrafast carrier and phonon dynamics in semiconductors [J]. *J. Appl. Phys.* 1998, **83**(4):1789—1830.