

低温生长 GaAs 非平衡载流子的超快动力学特性*

文锦辉 陈颖宇 黄淳 张海潮 林位株

(中山大学物理系,超快速激光光谱学国家重点实验室,广东,广州,510275)

TN304.23
0471

摘要 采用飞秒激光光谱技术研究了 LT-GaAs 受激载流子的超快弛豫特性,讨论了载流子散射、载流子-声子相互作用和缺陷捕获对载流子弛豫特性的贡献,测定载流子的捕获时间约为 500fs,并发现其随载流子的过超能量减少而增加。

关键词 LT-GaAs, 飞秒饱和吸收光谱, 缺陷捕获。

砷化镓 低温
载流子 超快动力学

引言

低温生长 GaAs(简称 LT-GaAs)是近年出现的新材料,由于具有亚皮秒的载流子寿命(目前半导体中最短),且退火后阻抗很高,电阻率达 $10^7 \Omega \text{cm}$,因而被认为是近于理想的超快光电材料,具有广阔的应用前景。如用于制作超快光电导开关^[1],用作器件缓冲层以消除边门或背门等在集成电路中常见的寄生问题^[2],作为保护层减弱离子注入的破坏^[3],等等。

LT-GaAs 已成为国际上研究的热点之一。有关 LT-GaAs 中缺陷态的类型及其与生长温度、退火温度的关系和对材料光电特性的影响,以及应用于各种器件方面,已有许多报道^[1~7]。而有关受激载流子超快动力学过程的研究,多介绍在导带底附近自由电子的动力学过程,采用一个衰变时间常数拟合飞秒饱和吸收谱线,将这个时间常数作为载流子的捕获时间,而忽略了载流子间散射和冷却过程^[8],认为这些过程只影响饱和吸收曲线的上升沿^[9],同时也忽略了重空穴态对饱和吸收的贡献。

我们认为,研究 LT-GaAs 受激载流子的超快弛豫特性,需考虑初始散射和冷却过程的影响,特别是对于导带底以上的能态,而载流子的捕获时间在不同条件下也应有所改变。本文采用多个波长的飞秒泵浦-探测技术,得到 LT-GaAs 的饱和吸收光谱,显示载流子的弛豫有 2 个过程,具有 2 个时间常数。通过改变激发和探测脉冲的波长,研究了缺陷捕获与光激发能量的关系,发现载流子的捕获速率随载流子过超能量的增大而加快。

1 实验

我们采用可调谐飞秒脉冲泵浦-探测技术和方法研究室温下 LT-GaAs 中受激载流子的超快动力学特性。飞秒激光脉冲由自锁模钛宝石激光器产生,脉宽约 60fs,波长可调谐范围为 750~850nm。一定波长的飞秒脉冲经分束镜分成 2 束,分别作为泵浦和探测脉冲,两者的

* 国家自然科学基金(编号 19874082)和广东省自然科学基金(编号 980368)资助项目
稿件收到日期 1998-11-09,修改稿收到日期 1999-02-05

偏振方向相互平行,强度比为 5 : 1. LT-GaAs 样品是在 Si : GaAs 衬底上由 1 层 $1\mu\text{m}$ 的 LT-GaAs 夹在 2 层 $2.4\mu\text{m}$ 的 $\text{Al}_{0.39}\text{Ga}_{0.61}\text{As}$ 缓冲层中而成,表面还有 1 层 100\AA 的 GaAs 保护层. LT-GaAs 是用 MBE 方法在 200°C 下生长,在 600°C 退火 10min 而成. 实验中样品 GaAs 衬底用研磨和腐蚀方法去除. 图 1 曲线 (b), (c), (d) 为激发波长分别是 760、790 和 850nm 在室温下的 LT-GaAs 飞秒饱和吸收曲线(受激载流子浓度 $N \sim 5 \times 10^{18}\text{cm}^{-3}$), 曲线 (a) 为本征 GaAs (简称 i : GaAs) 的饱和吸收曲线, 以作对比.

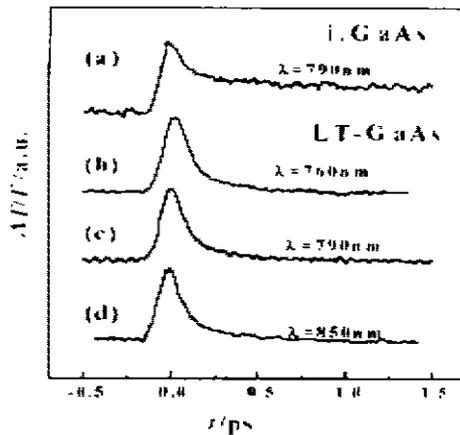


图 1 LT-GaAs 在不同激发波长下的饱和吸收光谱
Fig. 1 Femtosecond absorption saturation spectra of LT-GaAs for various exciting wavelengths

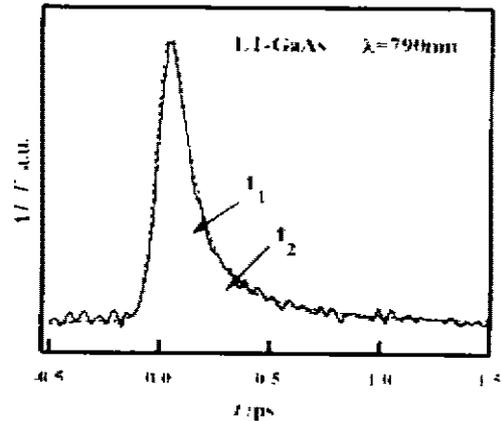


图 2 LT-GaAs 饱和吸收曲线的数据拟合,点线表示时间常数的成分
Fig. 2 The experimental curve of absorption saturation and theoretical fits of LT-GaAs

我们对 790nm 的 LT-GaAs 饱和吸收曲线进行数据处理(具体过程参照文献[10]),在扣除相干假像部分后,得到如图 2 所示的实线. 采用双指数拟合,得到图中的快成分(点划线)和慢成分(虚线),它们的时间常数 t_1 和 t_2 分别为 75 和 380fs , 权重系数为 $a_1 : a_2 = 0.8 : 0.2$, 如图 2 所示. 实线不能采用单指数来拟合,其它条件下测得的曲线也是如此. 作为对比,我们对相同条件下的本征 GaAs 饱和吸收曲线作类似的处理,得到 3 个时间常数, $t_1 = 80\text{fs}$, $t_2 = 1.5\text{ps}$, $t_3 = 1\text{ns}$. 下文分析这两种材料的不同饱和吸收曲线所反映受激载流子的不同动力学过程.

2 分析讨论

从图 1 可知,LT-GaAs 的饱和吸收特性曲线与本征 GaAs 的曲线有很大的不同. 本征 GaAs 曲线的后半段是一平缓的成分,这是由载流子驻留在导带上(约 1ns)引起,而 LT-GaAs 在脉冲激发后 1.2ps 左右,饱和吸收效应已消失,说明受激载流子已基本上被捕获至缺陷态,导带上无滞留.

我们知道^[10],本征 GaAs 受激载流子的弛豫过程大致可划分为初始散射、冷却和复合 3

个过程, 其中初始散射过程是非平衡载流子通过载流子间散射(电子-电子、电子-空穴、空穴-空穴)和载流子-光声子散射等各种散射过程从受激态过渡到非平衡态的过程($\approx 100\text{fs}$); 冷却过程是通过载流子-(LO、TO)声子相互作用与晶格交换能量, 达到热平衡的过程约在 $1\sim 2\text{ps}$ 时间内; 电子-空穴复合过程历时约 1ns . 这从本征 GaAs 的饱和吸收曲线的特点看出, 3 个时间常数分别表征 3 个过程的快慢. 由于激发后过剩能量主要集中于导带电子, 价带空穴的能量弛豫非常快^[11], 因而导带电子对样品吸收变化的影响是主要的, 可不考虑空穴的影响.

采用分子束外延方法在 200°C 下生长的 LT-GaAs, 富余 As 约 1% , 主要以反位 As_{Ga} 、间隙 As_{i} 、空位 V_{Ga} 等点缺陷形式存在, 密度达 $5\times 10^{20}/\text{cm}^3$ 左右, 经 600°C 退火后, 这些点缺陷会转变为直径约 $2\sim 10\text{nm}$ 的 As 沉淀^[7], 密度约 $10^{17}\sim 10^{18}/\text{cm}^3$. As 沉淀及剩余的点缺陷形成高密度的深能级缺陷态, 由于高密度缺陷态的存在, LT-GaAs 的光生载流子的超快动力学过程稍为复杂. 用光子能量为 1.5eV 左右的脉冲激发 LT-GaAs, 可引起价带(VB)至导带(CB)的跃迁, 以及缺陷态至导带较高激发态的跃迁, 也有少量双光子吸收的跃迁. 而受载流子的弛豫机制除了载流子-载流子散射, 载流子-光声子相互作用和电空复合外, 缺陷的捕获引起较大的影响. 而电空复合主要在缺陷态内进行, 复合时间在 $3\sim 50\text{ps}$ 之间, 由样品生长和退火的条件决定. 导带至价带的复合速率极慢, 在短时间内忽略不计.

由图 1 的实验曲线可见, LT-GaAs 中缺陷捕获载流子的时间在几百个 fs 至 $1\sim 2\text{ps}$ 量级, 远大于载流子间散射时间, 因而可认为因缺陷捕获而引起的导带上载流子浓度的改变不会显著影响初始散射过程的进行, 而载流子-光声子相互作用的速率一般说来对载流子浓度改变不敏感^[11], 所以载流子在导带的弛豫仍可划分为较快和较慢两个过程. 较快的过程主要决定于载流子初始散射, 而较慢的过程则主要决定于缺陷捕获及热载流子等离子体的冷却.

图 3 为 LT-GaAs 的受激电子的超快弛豫动力学过程的示意图, N 为导带激发探测(能态)区域 E_{pp} 的电子浓度, τ_c 为载流子-载流子散射时间, τ_{LO} 为电子-LO 声子作用时间, τ_d 为

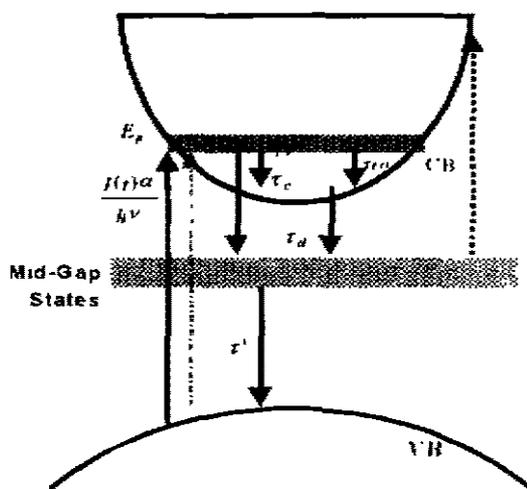


图 3 LT-GaAs 载流子超快动力学模型
Fig. 1 Ultrafast carrier dynamics model of LT-GaAs

缺陷捕获时间, τ_r 为载流子复合时间. 缺陷态至导带较高激发态的跃迁及双光子吸收跃迁的几率很小, 大约为 VB 至 CB 跃迁的 $1/50$ ^[8], 可忽略它们的影响. 载流子被捕获后再吸收探测光跃迁回导带的影响也忽略不计. 激发态 E_{pp} 附近载流子弛豫的速率方程可写为

$$\frac{dN}{dt} = \frac{I(t)}{h\nu} \sigma (N_0 - N) - \frac{N}{\tau_c} - \frac{N}{\tau_d} - \frac{N}{\tau_{\text{LO}}}, \quad (1)$$

其中 N_0 为该激发态的饱和电子浓度, 约为 $1\times 10^{19}\text{cm}^{-3}$. 经过初始散射过程, 载流子达到平衡的等离子体分布, 驻留在

其开关特性决定于载流子离开导带(价带)的快慢,即由缺陷捕获时间确定;而用作全光开关,其响应时间与材料的光诱导折射率变化有关,亦与激发态布居变化有关,则 3 种机制都有影响,其中初始散射的贡献占主要。

另外,我们认为 LT-GaAs 的缺陷捕获时间应与载流子的过超能量有关,为此比较相同激发强度条件下,激发波长分别为 755、760、790、810、830 和 850nm 的 LT-GaAs 饱和吸收曲线,分别导出其弛豫时间 t_1 和 t_2 ,结果见图 4。可看出,随着光激发能量的增大, t_1 和 t_2 都减小,载流子弛豫加快。由载流子散射的玻耳兹曼近似方法,计算相应条件的弛豫时间常数 τ_c 和 τ_{LO} ,可知载流子浓度 $N \approx 10^{18} \text{cm}^{-3}$ 时,载流子的过超能量增高,载流子间散射速率加快,载流子-LO 声子相互作用的速率则基本不变^[12]。将已求得的时间常数代入式(3)和(4),求得各激发波长的载流子捕获时间 τ_d ,结果如图 5。可见随着载流子过超能量增大,捕获时间减小,缺陷捕获速率加快。这可从关系式 $\tau_d = \frac{1}{N_d v \sigma}$ 来理解,其中 v 为载流子热运动速度, N_d 为缺陷的密度, σ 为缺陷的捕获截面。随载流子过超能量增大,受激载流子的热运动速度增大,因而载流子的捕获速率加快。

3 结论

本文利用飞秒激光泵浦-探测技术,研究了 LT-GaAs 载流子的超快动力学特性,并与本征 GaAs 进行了对比,表明高密度缺陷态对载流子的捕获,显著改变了受激载流子的弛豫特性。认为 LT-GaAs 受激载流子的弛豫过程具有 2 个时间常数,应考虑初始散射和冷却过程的影响。借助速率方程推导出受激电子的捕获时间约 500fs,并发现随光激发能量的增大,载流子的捕获速率加快。

REFERENCES

- 1 Lagadas M, Hatzopoulos Z, Komilios N, *et al.* Electrical properties of n-GaAs epilayers. EFT and HEMT structures grown on LT-GaAs by MBE. *Mater. Sci. and Eng. B.*, 1997, **44**: 1-3, 355-358
- 2 Phua C C, Chong T C, Lou W S, *et al.* Application of semiconducting low-temperature-grown GaAs to improve laser diodes grown on Si substrates. *Jan. J. Appl. Phys. Part I*, 1997, **36**, 3B, 1888-1891
- 3 Chen C H, Hu E L, Mishra U K, *et al.* Improvement in low energy ion-induced damage with a low temperature GaAs capping layer. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**(12), 1728-1730
- 4 Lochtefeld A J, Melloch M R, Chang J C P, *et al.* The role of point defects and arsenic precipitates in carrier trapping recombination in low-temperature-grown GaAs. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**(10): 1465-1467
- 5 Siegner U, Fluck R, Zhang G, *et al.* Ultrafast high-intensity nonlinear absorption dynamics in low-temperature-grown GaAs. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**(17): 2566-2568
- 6 Hozhabri N, Lee S H, Alavi K. Infrared measurements in annealed molecular beam epitaxy GaAs grown at low temperature. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **66**(19), 2546-2548
- 7 Warren A C, Woodall J M, Freeouf J L, *et al.* Arsenic precipitates and the semi-insulating properties of GaAs buffer layers grown by low temperature molecular beam epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 1990, **57**(12): 1331-1333
- 8 Benjamin S D, Loka H S, Othonos A, *et al.* Ultrafast dynamics of nonlinear absorption in low temperature-grown GaAs. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**(18): 2544-2546
- 9 Sosnowski T S, Norris T B, Wang H H, *et al.* High-carrier-density electron dynamics in low tempera-

- ture-grown GaAs, *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**(24): 3245—3247
- 10 LIN Wei-Zhu, QIU Zhi-Ren, XU Wen-Cheng, *et al.* Femtosecond relaxation of excited carriers in AlGaAs/GaAs multiple quantum wells. *Acta Optica Sinica* (林位株, 丘志仁, 徐文成, 等. AlGaAs/GaAs 多量子阱结构中受激载流子的飞秒弛豫特性. *光学学报*), 1992, **12**(5): 390—395
- 11 Taylor A J, Erskine D J, Tang C L. Ultrafast relaxation dynamics of photoexcited carriers in GaAs and related compounds. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1985, **2**(4): 663—673
- 12 Collet J H. Screening and exchange in the theory of the femtosecond kinetics of the electron-hole plasma. *Phys. Rev. B*, 1993, **47**(16): 10279—10291

ULTRAFAST CARRIER DYNAMICS OF LOW-TEMPERATURE-GROWN GaAs*

WEN Jin-Hui CHNE Ying-Yu HUANG Chun
ZHANG Hai-Chao LIN Wei-Zhu

(State Key Laboratory of Ultrafast Laser Spectroscopy, Physics Department,
Zhongshan University, Guangzhou, Guangdong 510275, China)

Abstract The ultrafast dynamics of nonequilibrium carriers of LT-GaAs was studied using femtosecond spectroscopy. The effects of carrier initial scattering, carrier-phonon interaction and carrier trapping on carrier relaxation properties were analyzed. A carrier trapping time of 500fs was measured, which was found to increase with decreasing carrier excess energy.

Key words LT-GaAs, femtosecond absorption saturation spectra, trapping by defects.

* The project supported by the National Natural Science Foundation of China and Natural Science Foundation of Guangdong Province, China
Received 1998-11-09, revised 1999-02-05