

07

Роль энергии фотонов возбуждения в динамике фотоиндуцированных носителей заряда в сверхрешеточных гетероструктурах InGaAs/InAlAs

© А.М. Буряков,¹ Д.И. Хусяинов,^{1,¶} Е.Д. Мишина,¹
Р.А. Хабибуллин,^{2,3} А.Э. Ячменев,^{2,3} Д.С. Пономарев^{2,3}

¹ МИРЭА — Российский технологический университет „РТУ МИРЭА“, Москва, Россия

² Институт сверхвысокочастотной полупроводниковой электроники РАН, Москва, Россия

³ Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва, Россия

¶ E-mail: Dinar1434429@mail.ru

Поступило в Редакцию 24 июля 2018 г.

Исследовано влияние энергии фотонов возбуждения на времена релаксации фотовозбужденных носителей заряда. Проведены оценка возникающих механизмов релаксации и анализ коэффициента отражения в сверхрешеточных гетероструктурах InGaAs/InAlAs. Построена модель изменения коэффициента отражения в барьерном слое InAlAs в зависимости от энергии фотонов возбуждения. Объяснено резонансное поведение коэффициента отражения.

DOI: 10.21883/PJTF.2018.23.47022.17469

Изучение сверхбыстрой динамики фотовозбужденных носителей заряда (ФНЗ) в полупроводниках является одной из ключевых задач для определения характеристик фотопроводящих антенн (ФПА) на их основе. Исследования фотопроводящих структур InGaAs/InP показали наличие двухфотонного поглощения (two-photon absorption) и поглощения излучения на свободных носителях (free-carrier absorption), влияние которых на динамику фотовозбужденных носителей заряда приводит к дополнительной экспоненциальной зависимости, обусловленной рассеянием носителей заряда на фонах [1]. Динамические свойства ФНЗ, связанные с процессами рассеяния носителей на фонах, процессами, соответствующими режиму горячих носителей заряда, и изменением

коэффициента отражения в зависимости от энергии фотонов возбуждения, слабо изучены в гетероструктурах и представляют особый интерес. Время жизни в подобных структурах было тщательно изучено в работе [2] в зависимости от концентрации легирования бериллием, тогда как исследование времени жизни носителей заряда в зависимости от энергии фотонов лазерной накачки является новой и перспективной задачей. Проведение таких исследований также обусловлено необходимостью определения наиболее эффективного диапазона работы ФПА на основе сверхрешеточных гетероструктур InGaAs/InAlAs.

Исследование динамики носителей заряда проводилось в образце на основе сверхрешетки, состоящей из 30 периодов последовательных слоев $\text{In}_{0.62}\text{Ga}_{0.38}\text{As}/\text{In}_{0.57}\text{Al}_{0.43}\text{As}$ с толщинами 12 и 4 nm соответственно. Низкая температура роста $T_s = 400^\circ\text{C}$ слоя $\text{In}_{0.57}\text{Al}_{0.43}\text{As}$ обеспечивает большое число ловушек для носителей заряда. При туннелировании между фотопроводящими слоями $\text{In}_{0.62}\text{Ga}_{0.38}\text{As}$ электроны захватываются ловушками в $\text{In}_{0.57}\text{Al}_{0.43}\text{As}$, которые служат центрами рекомбинации; их наличие приводит к увеличению сопротивления всей структуры. Исследуемый образец создан на основе работ авторов [3–5] по изучению генерации терагерцевого (THz) излучения в таких полупроводниковых структурах.

Кристаллическая структура сверхрешетки InGaAs/InAlAs была аттестована методом рентгеновской дифрактометрии. На основе результатов работы [6] были определены значения ширины запрещенной зоны в долинах Γ , X , L зоны проводимости в твердых растворах InGaAs и InAlAs. Для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с мольной долей $x = 0.62$ параметры зонной структуры составили $E_\Gamma = 0.64 \text{ eV}$, $E_X = 1.24 \text{ eV}$, $E_L = 1.23 \text{ eV}$. Для $\text{In}_y\text{Al}_{1-y}\text{As}$ с мольной долей $y = 0.57$ $E_\Gamma = 1.34 \text{ eV}$, $E_X = 1.72 \text{ eV}$, $E_L = 1.63 \text{ eV}$.

Исследование временной динамики ФНЗ в сверхрешетке InGaAs/InAlAs при энергиях оптического возбуждения 1.23–1.65 eV проводилось методом оптического „возбуждения-зондирования“ с использованием твердотельного лазера на основе кристалла сапфира, легированного ионами титана, с длительностью импульса 100 fs и частотой следования импульсов 80 MHz. Подробное описание экспериментальной установки приведено в работе [7]. Спектральные характеристики были измерены при перестройке длины волны оптической накачки и зондирования от 750 до 1000 nm.

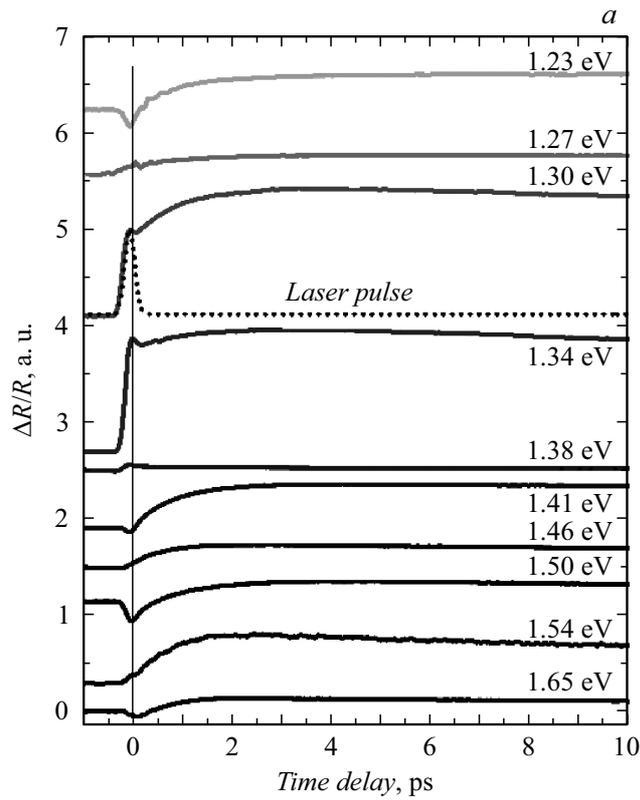


Рис. 1. Зависимости изменения коэффициента отражения от времени задержки между импульсами накачки и зондирования. Представлен спектральный набор кривых для энергий оптической накачки 1.23–1.65 eV. *a* — короткий диапазон, *b* — длинный диапазон. Для наглядности зависимости сдвинуты относительно друг друга по оси $\Delta R/R$.

На рис. 1, *a* и *b* представлены экспериментальные зависимости в диапазоне до 10 и 100 ps с шагом в 0.04 и 1 ps соответственно. Вариация диапазонов обоснована максимальным временным разрешением, которое позволяет оценить время рассеяния носителей заряда на фонах и процессов, соответствующих нетермическому режиму

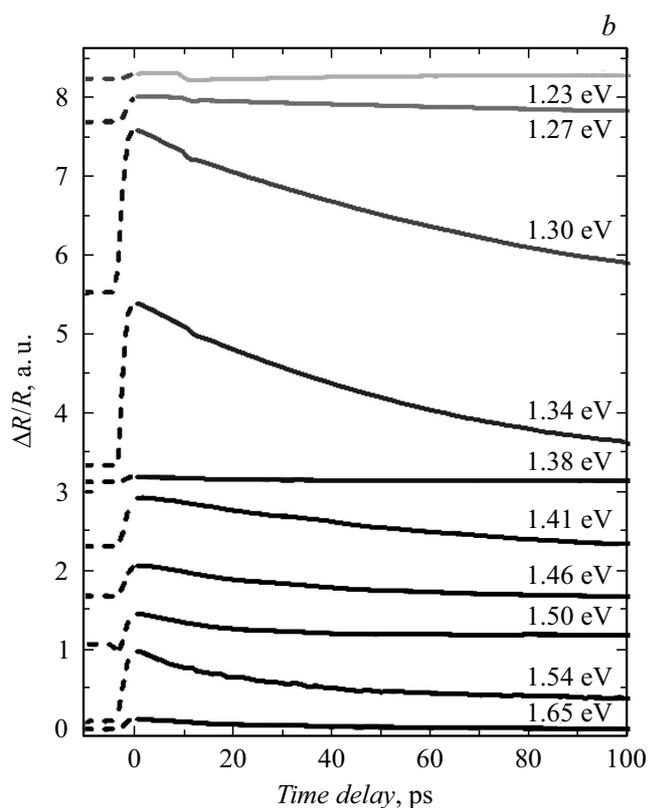


Рис. 1 (продолжение).

(< 2 ps), режиму горячих носителей ($\sim 1-100$ ps) и изотермическому режиму (> 100 ps) [8]. В соответствии с режимами, перечисленными выше, динамику ФНЗ можно разделить на пять процессов: момент возбуждения, обусловленный пришедшим лазерным импульсом (~ 100 fs), термализация носителей заряда (~ 150 fs), рассеяние носителей заряда на фононах с характерным временем τ_1 , процесс, связанный с перераспределением энергии, зависящей от скорости охлаждения носителей заряда до температуры кристаллической решетки, с временем τ_2 и, наконец, процесс перехода всех носителей в равновесное состояние с

временем τ_3 . Следует отметить, что в некоторых случаях τ_2 представляет собой сумму двух нелинейных процессов [8].

На рис. 1, *a* момент возбуждения неравновесных носителей хорошо виден и сопоставим во временном масштабе с длительностью лазерного импульса. Значение коэффициента отражения в момент воздействия фемтосекундного лазерного импульса принимает отрицательные и положительные значения. Согласно данным [9], такое поведение коэффициента отражения в момент возбуждения обусловлено нелинейностью показателя преломления вблизи энергии, соответствующей ширине запрещенной зоны в полупроводниках III–V групп.

Для качественной оценки времени жизни ФНЗ, за которое происходят процессы с τ_1 , τ_2 и τ_3 , использовалась феноменологическая функция экспонент, описывающая изменение коэффициента отражения $\Delta R/R$:

$$\frac{\Delta R}{R}(t_d) = \sum_i^3 \frac{A_i}{2} \exp\left(\frac{w^2}{4\tau_i^2} - \frac{\tau_d}{\tau_i}\right) \left[\operatorname{Erf}\left(\frac{\tau_d}{w} - \frac{w}{2\tau_i}\right) + 1 \right], \quad (1)$$

где i — номер процесса релаксации, τ_i — время, отвечающее за процесс релаксации, w — длительность импульса, t_d — время задержки между импульсами.

Аппроксимация проводилась на короткой (рис. 1, *a*) и длинной (рис. 1, *b*) временной зависимости для повышения точности оценки τ_2 . Время τ_1 процесса, обусловленного рассеянием носителей на фононах, в зависимости от энергии накачки менялось от 0.6 до 1.9 ps.

На рис. 2, *a* представлена зависимость, соответствующая временной константе τ_2 . Константа τ_2 является наиболее важным параметром, так как она характеризует ширину спектра THz-излучения, детектируемого антенной на основе исследуемого материала: чем меньше τ_2 , тем шире спектр детектирования ФПА [10]. Анализируя энергетические состояния слоев сверхрешетки, можно отметить, что переход энергии фотонов возбуждения выше запрещенной зоны InAlAs добавляет механизм сверхбыстрой релаксации, обусловленной наличием ловушек в этом слое. В связи с этим мы наблюдаем снижение времени жизни носителей заряда τ_2 при высоких энергиях возбуждения. Однако значение времени жизни при энергии фотонов, равной 1.23 eV, тоже принимает низкое значение, что может быть связано с влиянием X-долины в InGaAs.

Зависимость коэффициента отражения от энергии фотонов оптической накачки для времен до 100 ps представлена на рис. 2, *b*. Времена,

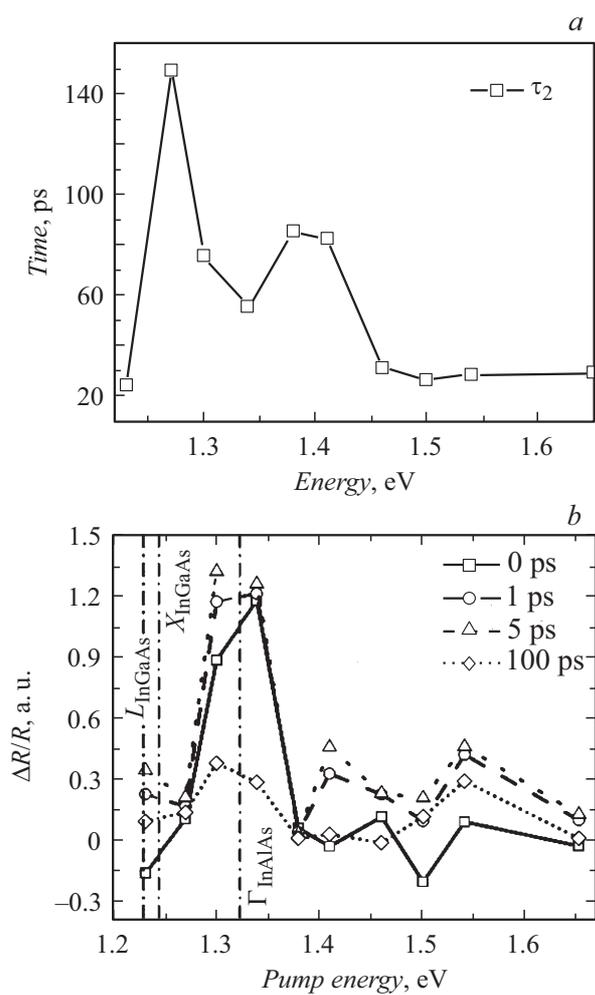


Рис. 2. *a* — зависимости временной константы τ_2 от энергии оптической накачки, *b* — зависимость коэффициента отражения в различные моменты времени задержки от энергии оптической накачки.

при которых построены зависимости относительного коэффициента отражения от энергии фотонов оптической накачки $\tau = 0, 1, 5, 100$ ps, были зафиксированы таким образом, чтобы охарактеризовать четыре перечисленных выше процесса. Из рис. 2, *b* видно, что от процесса зависит лишь амплитуда кривой, а не ее характер. Самый высокий коэффициент отражения достигается при значении 1.34 eV, которое обусловлено величиной энергии запрещенной зоны в $E_g = 1.321$ eV в InAlAs. Со временем пик коэффициента отражения при энергии фотонов оптической накачки 1.34 eV постепенно спадает и в момент времени, соответствующий 100 ps, перестает выделяться из общей картины динамики ФНЗ.

Для качественного описания изменения коэффициента отражения в диапазоне энергий фотонов оптического возбуждения от 1.23 до 1.65 eV использовалась модель, представленная в работе [11]. Использование данной модели корректно для моделирования изменения коэффициента отражения в InAlAs, так как это широкозонный полупроводник и из-за низкой температуры роста в нем присутствует высокая концентрация центров безызлучательной рекомбинации.

Динамика носителей заряда учитывалась при помощи модели Шокли–Рида–Холла [10–12]:

$$\frac{dn}{dt_d} = \frac{I(t_d)}{h\nu} \alpha - C_n n(N_t - n_t) + n_t C_n^{th}, \quad (2)$$

$$\frac{dn_t}{dn_d} = -C_p n_t p + C_n n(N_t - n_t) + C_p^{th}(N_t - n_t) - C_n^{th} n_t, \quad (3)$$

$$\frac{dp}{dt_d} = \frac{I(t_d)}{h\nu} \alpha - C_p n_t p + C_p^{th}(N_t - n_t), \quad (4)$$

где p — равновесная концентрация дырок, n — равновесная концентрация электронов, n_t — концентрация неионизированных безызлучательных центров рекомбинации, N_t — концентрация ионизированных безызлучательных центров рекомбинации, $I(t_d)$ — концентрация фотовозбужденных носителей заряда, инжектируемых фемтосекундным импульсом, α — коэффициент поглощения для исследуемого материала, C_p — коэффициент захвата дырок, C_n — коэффициент захвата электронов, C_n^{th} , C_p^{th} — коэффициенты, описывающие вероятность переизлучения квазичастицы в валентную зону или зону проводимости.

Для моделирования изменения концентрации носителей заряда в зависимости от энергии фотонов оптического возбуждения время было зафиксировано на моменте возбуждения фемтосекундным импульсом 0 ps. Равновесная концентрация электронов была выбрана равной 10^{17} cm^{-3} , концентрация дырок — равной 10^{18} cm^{-3} , концентрация безызлучательных центров рекомбинации $n_t = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

Зависимость коэффициента отражения от энергии фотонов оптического возбуждения определяется комплексным показателем преломления с действительной и мнимой частями, которые соотносятся при помощи уравнения Крамерса–Кронига. Для действительной и мнимой частей коэффициента преломления при высоких значениях плотности ФНЗ необходимо учесть два эффекта: заполнение зоны проводимости и перенормировку запрещенной зоны ($\Delta\alpha_{BF}$ и $\Delta\alpha_{BGR}$ соответственно), которые записываются следующим образом [13]:

$$\Delta\alpha_{BF} = \sum_{i=hh, lh} \frac{C_i}{E} \sqrt{E - E_g + \Delta E_{BGR}(t_d)} [f_v(t_d) - f_c(t_d) - 1], \quad (5)$$

$$\Delta\alpha_{BGR} = \sum_{i=hh, lh} \frac{C_i}{E} \left(\sqrt{E - E_g + \Delta E_{BGR}(t_d)} - \sqrt{E - E_g} \right), \quad (6)$$

где $\Delta E_{BGR} = \gamma(\Delta n(t_d)^{1/3}/m_e + \Delta p(t_d)^{1/3}/m_{dh})$ — фотовозбужденная ренормализация запрещенной зоны, $m_{dh} = (m_{th}^{3/2} + m_{hh}^{3/2})^{2/3}$, значение константы γ взято из [11]; f_v и f_c представляют собой функции Ферми–Дирака для электронов и дырок в валентной зоне и зоне проводимости соответственно:

$$f_c(t_d) = \left(1 + \exp \left(\frac{E_{ahh,alh} - E_{fc}(t_d)}{kT} \right) \right)^{-1},$$

$$f_v(t_d) = \left(1 + \exp \left(\frac{E_{hh, lh} - E_{fv}(t_d)}{kT} \right) \right)^{-1}, \quad (7)$$

$C_{hh, lh}$ — константы, которые описывают параметры материала [13], индексы hh, lh соответствуют тяжелым и легким дыркам; $E_{hh, lh}$ — энергии в валентной зоне, $E_{ahh, alh}$ — энергии в зоне проводимости; E_{fc}, E_{fv} — зависящие от носителей заряда квазиуровни Ферми для

электронов и дырок, которые могут быть рассчитаны с помощью уравнения Томаса–Нильсона, полученного эмпирической аппроксимацией для полупроводников при учете параболической зоны [13]:

$$E_{fc}(t_d) = kT \left(\ln \left(\frac{\Delta n(t_d)}{N_c} \right) + \frac{\Delta n(t_d)}{N_c} \left(u + v \frac{\Delta n(t_d)}{N_c} \left(u + \sqrt{\frac{\Delta n(t_d)}{N_c}} \right) \right)^{-\frac{1}{4}} \right), \quad (8)$$

$$E_{fv}(t_d) = kT \left(- \left\{ \ln \left(\frac{\Delta p(t_d)}{N_v} \right) + \frac{\Delta p(t_d)}{N_v} \left(u + v \frac{\Delta p(t_d)}{N_v} \left(u + \sqrt{\frac{\Delta p(t_d)}{N_v}} \right) \right)^{-\frac{1}{4}} \right\} - E_g \right), \quad (9)$$

где $u = 64$ и $v = 55 \cdot 10^{-3}$ — феноменологические константы [13]. Коэффициент поглощения может быть записан при помощи соотношения Крамерса–Кронига [9], которое позволяет рассчитать фотовозбужденное изменение в действительной части коэффициента преломления

$$\Delta \eta(\hbar\omega, t_d) = \frac{\hbar c}{\pi} \int_e^{+\infty} \frac{\Delta \alpha(E, t_d)}{E^2 - (\hbar\omega)^2} dE.$$

Фотовозбужденное изменение мнимой части коэффициента преломления записывается как

$$\Delta \kappa(\hbar\omega, t_d) = \frac{c}{2\omega} \Delta \alpha(\hbar\omega, t_d).$$

Дифференциальный коэффициент отражения рассчитывается из уравнения Френеля

$$\frac{\Delta R(\hbar\omega, t_d)}{R_0} = \frac{1}{R_0} \left(\Delta \eta(\hbar\omega, t_d) \frac{\partial R}{\partial \eta} + \Delta \kappa(\hbar\omega, t_d) \frac{\partial R}{\partial \kappa} \right). \quad (10)$$

Используя уравнения (5)–(10), мы провели расчет коэффициента отражения в зависимости от энергии фотонов оптического возбуждения. Результаты расчета приведены на рис. 3. При энергии фотонов 1.321 eV, соответствующей ширине запрещенной зоны $\text{In}_{0.57}\text{Al}_{0.43}\text{As}$, наблюдается

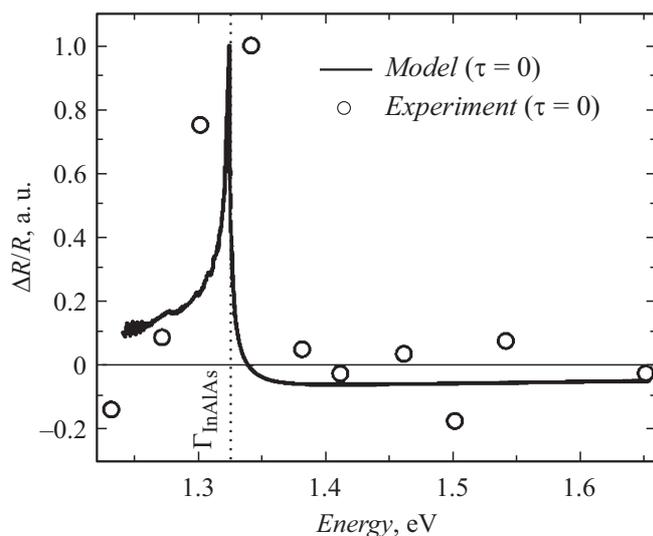


Рис. 3. Зависимость дифференциального коэффициента отражения в момент времени $\tau = 0$ от энергии оптического возбуждения в InAlAs. Точки — экспериментальные данные.

интенсивный пик относительного коэффициента отражения, что согласуется с экспериментальными данными. Пик при энергиях, близких к ширине запрещенной зоны $\text{In}_{0.57}\text{Al}_{0.43}\text{As}$ ($E_g = 1.321 \text{ eV}$), объясняется доминированием нелинейного эффекта перенормировки запрещенной зоны в момент максимальной интенсивности лазерного импульса. При энергиях 1.46–1.65 eV наблюдаются отрицательные значения коэффициента отражения, которые также обусловлены нелинейным эффектом перенормировки запрещенной зоны, который доминирует над эффектом заполнения зоны проводимости.

В заключение отметим, что нами была рассмотрена временная динамика ФНЗ в сверхрешеточной гетероструктуре InGaAs/InAlAs методом оптической „накачки–зондирования“, что позволило оценить времена характерных сверхбыстрых процессов в структуре (рассеяние носителей заряда на фононах, рекомбинация и т.д.) в зависимости от энергии фотонов оптического возбуждения. Была построена модель

изменения коэффициента отражения в барьерном слое InAlAs, которая объясняет пик максимального значения коэффициента отражения при энергии фотонов 1.34 eV нелинейными процессами, возникающими при энергиях фотонов оптического возбуждения, сопоставимых с энергией запрещенной зоны полупроводника. Нами было показано, что наименьшее время рекомбинации для исследуемой структуры достигается при энергии фотонов накачки 1.5 eV и составляет 27 ps. Полученные данные свидетельствуют о перспективности использования сверхрешеточных гетероструктур InGaAs/InAlAs в качестве базового материала для широкополосного детектора THz-излучения, работающего с высокоэнергетическим лазерным возбуждением.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (государственное задание № 3.7331.2017/9.10) и РФФИ (гранты 18-02-00843 и 16-29-14029 офи_м). Эпитаксиальный рост сверхрешеточной гетероструктуры InGaAs/InAlAs проведен А.Э. Ячменевым, Д.С. Пономаревым и Р.А. Хабибуллиным при финансовой поддержке гранта РФФИ 18-79-10195 и гранта Президента МК-5450.2018.2. Экспериментальные исследования выполнены с использованием оборудования ЦКП „УНО „Электроника“.

Список литературы

- [1] Langlois P., Joschko M., Thoen E.R., Koontz E.M., Kärtner F.X., Ippen E.P., Kolodziejski L.A. // Appl. Phys. Lett. 1999. V. 75. N 24. P. 3841–3843.
- [2] Dietz R.J.B., Globisch B., Roehle H., Stanze D., Góbe T., Schell M. // Opt. Express. 2014. V. 22. N 16. P. 19411–19422.
- [3] Пономарев Д.С., Хабибуллин Р.А., Ячменев А.Э., Павлов А.Ю., Слаповский Д.Н., Глинский И.А., Лаврухин Д.В., Рубан О.А., Мальцев П.П. // ФТП. 2017. Т. 51. В. 9. С. 1257–1272.
- [4] Глинский И.А., Зенченко Н.В., Мальцев П.П. // Рос. технологический журнал. 2016. Т. 4. № 3. С. 27–36.
- [5] Галиев Г.Б., Пушкарев С.С., Буряков А.М., Билык В.Р., Мишина Е.Д., Климов Е.А., Васильевский И.С., Мальцев П.П. // ФТП. 2017. Т. 51. В. 4. С. 529–534.
- [6] Vurgaftman I., Meyer J.R., Ram-Mohan L.R. // J. Appl. Phys. 2001. V. 89. N 11. P. 5815–5875.

- [7] Хусяинов Д.И., Буряков А.М., Бильк В.Р., Мишина Е.Д., Пономарев Д.С., Хабибуллин Р.А., Ячменев А.Э. // Письма в ЖТФ. 2017. Т. 43. В. 22. С. 48–54.
- [8] *Shah J.* Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures. Springer Ser. in Solid-State Sciences. Berlin–Heidelberg: Springer, 1999. V. 115. 522 p.
- [9] *Prabhu S.S., Vengurlekar A.S.* // J. Appl. Phys. 2004. V. 95. N 12. P. 7803–7812.
- [10] *Wells N.P., Belden P.M., Demers J.R., Lotshaw W.T.* // J. Appl. Phys. 2014. V. 116. N 7. P. 73506.
- [11] *Ortiz V., Nagle J., Lampin J.-F., Péronne E., Alexandrou A.* // J. Appl. Phys. 2007. V. 102. N 4. P. 43515.
- [12] *Khusyainov D.I., Dekeyser C., Buryakov A.M., Mishina E.D., Galiev G.B., Klimov E.A., Pushkarev S.S., Klochkov A.N.* // Int. J. Mod. Phys. B. 2017. V. 31. N 27. P. 1750195 (1–9).
- [13] *Bennett B.R., Soref R.A., Del Alamo J.A.* // IEEE J. Quantum Electron. 1990. V. 26. N 1. P. 113–122.