

Фазочувствительный анализ спектров фотоотражений *n*-GaAs

© А.В. Ганжа*†, В. Кирхер†, Р.В. Кузьменко*†, Й. Шрайбер†, Ш. Хильдебранд†

* Воронежский государственный университет,
394000 Воронеж, Россия

† Fachbereich Physik der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg,
D-06108 Halle (Saale), Германия

(Получена 8 января 1997 г. Принята к печати 9 сентября 1997 г.)

При помощи двухканальной фазочувствительной усилительной техники была исследована фазовая зависимость спектров фотоотражения на E_0 переходах для различных образцов GaAs. В результате анализа формы спектров были выделены их спектральные составляющие и установлены их фазы. Для наблюдавшихся однокомпонентных и многокомпонентных спектров фотоотражения были получены временные постоянные, описывающие динамику сигнала фотоотражения. Временная зависимость сигнала фотоотражения $\Delta R/R_j \sim \pm \exp(-t/\tau_j)$ была связана с замедленной реакцией электрического поля в области поверхности или границы раздела полупроводника на фотомодуляцию.

Фотоотражение (ФО) — чувствительный, неразрушающий, бесконтактный оптический метод для изучения свойств поверхности и границы раздела различных полупроводниковых материалов и полупроводниковых структур. Получение содержащейся в спектрах ФО информации происходит в общем случае посредством анализа различных спектральных компонент, составляющих спектр. Как правило, предполагается, что ответ отражения на оптическую модуляцию происходит мгновенно. Этому противоречат, однако, многие экспериментальные результаты [1–4], указывающие на фазовую задержку сигнала фотоотражения по отношению к оптической модуляции.

Модуляция отражения при ФО осуществляется посредством периодического освещения поверхности исследуемого объекта дополнительным оптическим источником, как правило лазером, свет которого проходит через механический прерыватель с частотой f .

Сигнал фотоотражения обладает временной зависимостью $R(t)$, которая в наиболее простом случае, при прямоугольной модуляции, описывается экспоненциальной функцией с единственной характеристической временной постоянной τ

$$R(t) = \begin{cases} R_0 + \Delta R - \frac{\Delta R}{1 + e^{-T/2\tau}} e^{-\frac{t}{\tau}}, \\ R_0 + \frac{\Delta R}{1 + e^{-T/2\tau}} e^{-\frac{t+T/2}{\tau}}, \end{cases} \quad (1)$$

где t — время, а $T = 1/f$ — период модуляции. Первый член описывает ход сигнала отражения R под действием лазерного возбуждения, а второй — при отсутствии последнего.

Использование двухканального фазочувствительного усилителя, т.е. усилителя на выход которого поступает комплексный сигнал, состоящий из сигнала, находящегося в фазе с модуляцией, и второй мнимой составляющей, смещенной относительно него на 90° , приводит к тому, что спектр фотоотражения при учете временной зависимости сигнала отражения $R(t)$, описывается следующим

образом:

$$\frac{\Delta R}{R}(E, F_s(\tau, \omega)) = \frac{\Delta R}{R}(E, F_s) \frac{2}{\pi(1 + \omega^2\tau^2)} \times (1 - i\omega\tau), \quad (2)$$

где E — энергия фотонов, F_s — напряженность электрического поля, а $\omega = 2\pi f$ — частота модуляции. Из временной зависимости $R(t)$ следует фазовая задержка δ сигнала ФО по отношению к фазе модулирующего света.

Фазочувствительный усилитель (ФЧУ) определяет амплитуду первой компоненты Фурье входного сигнала при опорной частоте и предустановке фазы θ . С помощью двухканального ФЧУ определяются или компоненты сигнала в фазе к опорной частоте (X) и сдвинутая на 90° компонента (Y), или амплитуда $r(e)$ и фаза $\delta(e)$ модулированного переменного сигнала по отношению к модулирующему сигналу (рис. 1):

$$\frac{\Delta R}{R}(E) = r(E)e^{i\delta(E)} = x(E) + iy(E). \quad (3)$$

Фаза сигнала δ определяется на рис. 1 как угол между фазой рассеянного модулирующего света и сигналом ФО. Отрицательное значение угла δ означает, что между модуляцией и ответом осуществляет временная задержка. На рисунке изображена также фазовая предустановка θ , практический смысл которой будет разъяснен в экспериментальной части.

На рис. 2 приведено параметрическое представление выходного сигнала двухканального ФЧУ $Y(E)$ от $X(E)$ для двухкомпонентного спектра. Основываясь на разработанном пакете программ для моделирования и нелинейной подгонки экспериментальных спектров, были проведены расчеты двух типичных спектральных форм ФО. Рассмотрим спектр (см. правую верхнюю часть рис. 2, компонента I), типичной для ФО в низкополевом случае или экситонных переходов [5]. Фаза этого спектра запаздывает по отношению к лазерной модуляции на угол δ_1 . Для одной из точек этого спектра в левой

верхней части рис. 2 дано векторное представление сигнала ФО. Множество всех точек спектра $X(E = h\nu)$, $Y(E = h\nu)$ должно представлять из себя таким образом прямую, составляющую с осью X (последняя по определению совпадает с фазой модуляционного лазерного света) угол δ_1 . Полностью аналогичный результат ожидается для всех спектров ФО, состоящих только из одной спектральной компоненты, временная зависимость которой определяется единственной временной постоянной.

Таким образом, для данного представления, называемого фазовой диаграммой, для $\text{tg } \delta$ верно:

$$\text{tg } \delta = \frac{y(E)}{x(E)} = \frac{\text{Im}(1 - i\omega\tau)}{\text{Re}(1 - i\omega\tau)} = -\omega\tau. \quad (4)$$

Ясно, что для единственной спектральной компоненты и постоянной частоты модуляции величина $\omega\tau$ остается постоянной (при этом энергия фотонов E , а значит, и $\Delta R/E(E)$ остается единственной переменной величиной), что позволяет из фазового положения спектра ФО и частоты ω определить характеристическую временную постоянную процесса модуляции τ .

В случае, когда $\omega\tau = 0$, реальная часть сигнала ФО (X) имеет максимальную величину и синхронна с модуляцией ($\delta = 0$), что возможно как для $\tau = 0$, так и для минимальной модуляционной частоты ($\omega \rightarrow 0$). В другом предельном случае, когда $\omega\tau = \infty$, величина сигнала ФО становится исчезающе малой, в то время как фазовое запаздывание (угол δ) достигает $-\pi/2$. Фазовая линия лежит, таким образом, полностью в четвертом квадранте. Поскольку значения амплитуды ФО могут принимать как положительные, так и отрицательные значения, значения фазы $\delta(E)$ могут лежать и во втором квадранте, при этом, однако, сохраняется соотношение $0 \geq \delta \geq -\pi/2$.

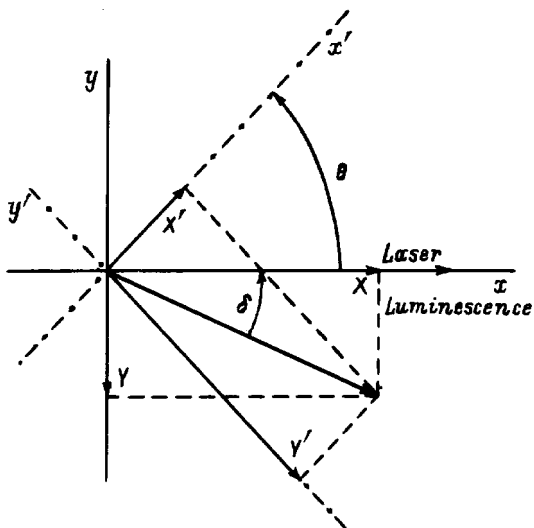


Рис. 1. Фазовое положение сигнала ФО (показано жирной стрелкой) по отношению к модулирующему свету. Показана измеряемая на ФЧУ фаза сигнала в отсутствие (система координат x, y) и при наличии (система координат x', y') фазовой предустановки θ . Истинное значение угла фазовой задержки δ определяется для $\theta = 0^\circ$.

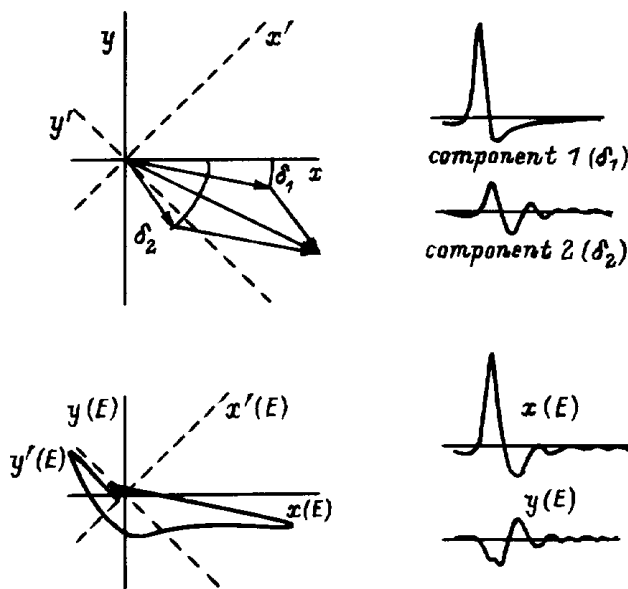


Рис. 2. Фазовые диаграммы спектров ФО. С помощью симуляции двухкомпонентного спектра ФО для каналов X и Y ФЧУ показано влияние состава сигнала ФО на вид фазовой диаграммы.

Для демонстрации поведения многокомпонентных спектров была модулирована вторая спектральная компонента (в правом верхнем углу на рис. 2, компонента 2), характерной чертой которой являются так называемые осцилляции Франца–Келдыша (ФКО) [6]. Угол фазового запаздывания этой компоненты по отношению к лазерной модуляции составляет δ_2 .

Каждая спектральная точка двухкомпонентного спектра, представляющего из себя суперпозицию компонент 1 и 2, определяется векторной суммой обоих спектральных вкладов (см. левую верхнюю часть рис. 2). Величина суммарного вектора и его фазовое положение зависят от спектральной формы, относительной амплитуды и временного запаздывания отдельных составляющих. Таким образом, для каждой из точек суперпозиционного спектра ожидаются векторы с различными фазами сигнала $\delta(E)$. Для фазовой диаграммы результирующего спектра будет получено представленное в левой нижней части рисунка параметрическое представление компонент $X(E)$ и $Y(E)$ (спектральный вид этих компонент для выходов X и Y , являющихся суперпозицией спектров из правой верхней части рис. 2, представлен в правой нижней четверти того же рисунка) с энергией фотонов в качестве параметра.

В то время как фазовые диаграммы однокомпонентных спектров предсталяют собой прямые, лежащие во II и IV квадрантах, при наложении по меньшей мере двух компонент возможны любые фазы сигнала $\delta(E)$.

В случае, когда спектр состоит из n -го числа компонент ФО, формула (2), описывающая форму спектра,

Фазовые задержки δ и характеристические временные постоянные τ спектральных компонент фотоотражения в области перехода E_0

Компонента ФО		GaAs-подложка, естественно окислена ($f = 167$ Гц)	GaAs, поверхность обработана в $ZrOCl_2 \times 8H_2O + O_2$ ($f = 2500$ Гц)	n -GaAs/ n^+ -GaAs ($f = 2500$ Гц)
СП/ФКО	$\delta, ^\circ$	-4	-1	-12
	$\tau, \text{мкс}$	59.5	1.1	13.3
Экситон	$\delta, ^\circ$	-	-	-11
	$\tau, \text{мкс}$	-	-	12.2
Дефекты или примеси	$\delta, ^\circ$	-	-18	-
	$\tau, \text{мкс}$	-	21	-
НЭИО	$\delta, ^\circ$	-	-	-65
	$\tau, \text{мкс}$	-	-	110

приобретает следующий вид:

$$\frac{\bar{R}}{R}(E, F_s, \tau, \omega) = \sum_{j=1}^n \frac{\Delta R_j}{R}(E, F_s) \times \frac{2}{\pi(1 + \omega^2 \tau_j^2)} (1 - i\omega \tau_j). \quad (5)$$

Каждой из компонент ФО будет соответствовать собственное запаздывание фазы δ_j и собственная временная постоянная τ_j

$$\text{tg } \delta_j = \frac{y_j(E)}{x_j(E)} = -\omega \tau_j, \quad (6)$$

которые, однако, могут быть установлены только после проведения полной процедуры подгонки формы спектра, причем и для X , и для Y каналов ФЧУ. Корректность подгонки будет устанавливаться в данном случае посредством сравнения фазовых диаграмм экспериментального и модельного спектров.

Необходимо также провести короткое рассмотрение физических причин возникновения временной зависимости $\Delta R(t)$ и вытекающего из нее запаздывания фаз различных спектральных компонент ФО. Поскольку наиболее частой причиной возникновения сигнала ФО является оптическая модуляция электрических полей в области объемного заряда на поверхности и(или) границе раздела полупроводников, динамика перезарядки электронных состояний в областях модуляции играет большую роль для наблюдаемых временных эффектов. При этом особое значение для возникновения фазового смещения между оптической модуляцией и сигналом отражения имеют темп захвата, реэмиссии и рекомбинации фотогенерируемых носителей заряда на этих состояниях [2,7,8].

Поскольку модуляция электрических полей на поверхности и границе раздела сопровождается изменением изгиба зон и глубины области объемного заряда, за появление фазовой задержки сигнала ФО могут быть

ответственны также емкостные эффекты в приповерхностной области, описываемые временной постоянной $\tau = RC$ [2].

Границы области, в которой возможно измерение временных постоянных τ , определяются техническими характеристиками используемых приборов и составляют для нашей аппаратуры

$$30 \text{ мс} \geq \tau > 0.6 \text{ мкс}.$$

Поскольку все зарегистрированные нами постоянные лежат выше нижней границы 0.6 мкс, мы должны исключить влияние более быстрых процессов диффузии и дрейфа носителей заряда на временную постоянную τ .

Перейдем теперь к рассмотрению экспериментальных результатов, полученных на образцах GaAs в области перехода E_0 . Все исследования проводились на воздухе при комнатной температуре.

На рис. 3 представлены результаты исследований фотоотражения на образце GaAs ($n(\text{Si}) = 1 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$). Перед измерениями на ФЧУ была проведена предустановка фазы θ ($\theta = 45^\circ$), что привело к получению сравнимых амплитуд сигнала для компонент $X(E)$ и $Y(E)$ (в отсутствие предустановки величина сигнала $Y(E)$ становится сравнимой с уровнем шума).

Вид фазовой диаграммы (рис. 3, *b*) и совпадение подгоночных параметров, использованных для подгонки компонент $X(E)$ и $Y(E)$ (рис. 3, *a*), подтверждают однокомпонентный характер спектра ФО.

На рис. 4 представлен двухкомпонентный спектр ФО в области перехода E_0 , полученный от образца GaAs ($n(\text{Si}) = 1 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$). На первый взгляд без проведения фазового анализа нельзя установить его многокомпонентный характер. Однако путем введения предустановки $\theta = 89^\circ$ в компоненте $X(E)$ удалось подавить один из двух спектральных вкладов (среднеполювую компоненту) так, что стало возможным выделение другого вклада (примесной структуры) в его чистой спектральной форме (рис. 4, *a*, верхний спектр). Данная процедура приводит в дальнейшем к значительному упрощению

анализа спектра ФО. Явное отклонение от прямой в соответствующей экспериментальной фазовой диаграмме (см. рис. 4, *b*) также подтверждает многокомпонентный характер представленного спектра.

В результате анализа формы спектра был выделен среднеполевой вклад (рис. 4, *a*, штриховая линия). Фазовое запаздывание данной компоненты может быть легко определено из предустановочной измерительной фазы

($\delta = -1^\circ$). Величина фазовой задержки второй компоненты определяется с помощью полученных в результате анализа формы компонент $X(E)$ и $Y(E)$ экспериментального спектра и построенной с их помощью фазовой диаграммы. Каждой из компонент соответствует своя линейная фазовая диаграмма. Фазовые углы спектральных составляющих показаны на вставке (рис. 4, *b*) с помощью соответствующих фазовых векторов.

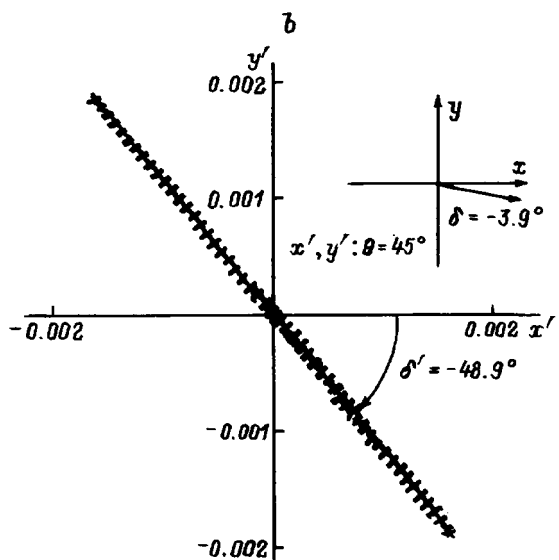
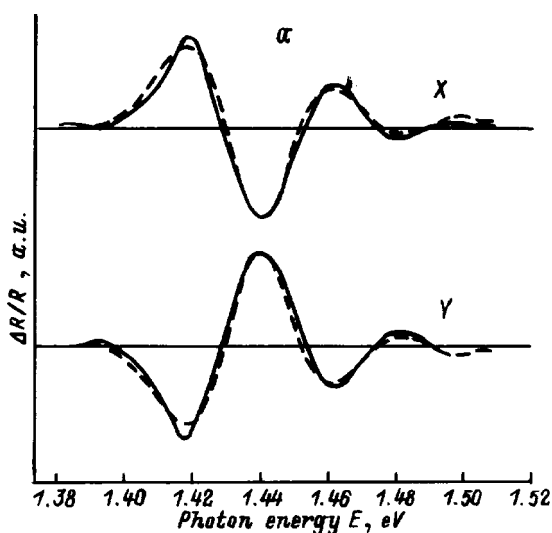


Рис. 3. *a* — экспериментальные спектры ФО в области E_0 перехода, снятые на образце *n*-GaAs. Представлены спектры ФО, полученные для каналов X и Y ФЧУ (сплошные линии), а также их подгонки (штриховые). Параметры подгонок ($E_0 = 1.412$ эВ, $F = 3.44 \times 10^6$ В/м, $\Gamma = 12$ мэВ) совпадают для обоих каналов. *b* — экспериментальная фазовая диаграмма спектров ФО, представленных на рис. 3, *a*, с предустановкой $\theta = 45^\circ$. Форма фазовой диаграммы и совпадение параметров, использовавшихся для подгонки спектров $X(E)$ и $Y(E)$, подтверждают однокомпонентный характер сигнала ФО. Фазовый угол спектра показан на вставке с помощью соответствующего фазового вектора.

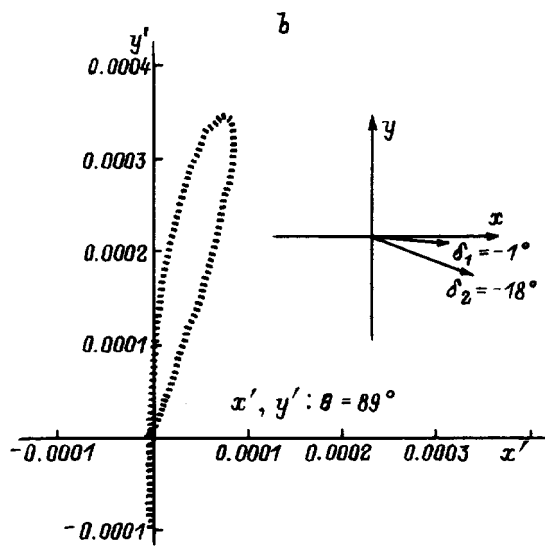
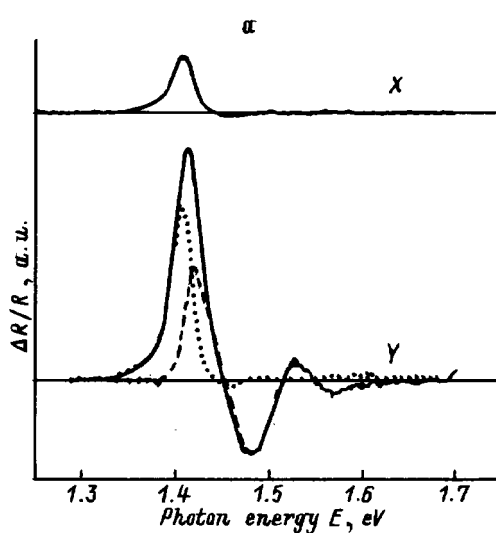


Рис. 4. *a* — экспериментальные спектры ФО (сплошные линии), полученные для каналов X и Y от образца *n*-GaAs. Для спектра Y, приведенные выделенные в результате спектрального анализа среднеполевая (штриховая линия) и примесная (точечная) компоненты ФО. Разность ΔE между определенной из подгонки структуры СП/ФКО энергией перехода $E_0 = 1.423$ эВ и энергетическим положением пика второй структуры E_i составляет 17 мэВ. *b* — экспериментальная фазовая диаграмма спектров ФО, представленных на рис. 4, *a*, при предустановке $\theta = 89^\circ$. Форма фазовой диаграммы указывает на сложный характер сигнала ФО. Фазовые углы спектральных составляющих показаны на вставке с помощью соответствующих фазовых векторов.

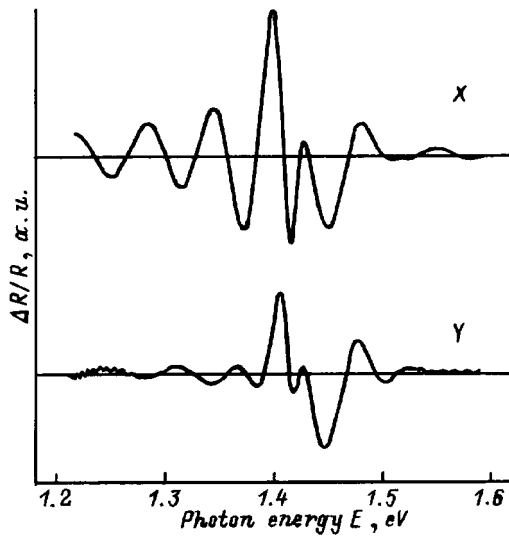


Рис. 5. Экспериментальные спектры ФО, полученные для каналов X и Y на гомоэпитаксиальном образце GaAs/GaAs.

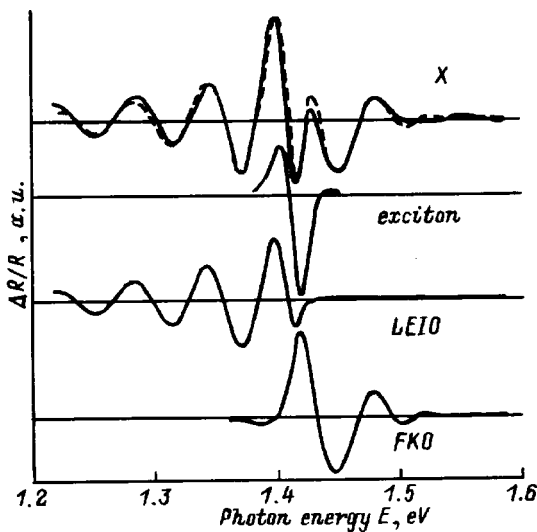


Рис. 6. Результаты спектрального анализа спектра $X(E)$ ФО из рис. 5. Для сравнения представлена изображенная штриховой линией лучшая подгонка экспериментального спектра, составленная из трех показанных далее спектральных компонент. Параметры подгонки: a — (exciton) $E_{exc} = 1.416$ эВ, $\Gamma = 23.6$ мэВ; b — (LEIO) $d_{layer} = 2345$ нм; c — (FKO) $E_0 = 1.432$ эВ, $F = 7.31 \times 10^7$ В/м, $\Gamma = 20.5$ мэВ.

С учетом значения частоты модуляции $f = 2500$ Гц и при использовании формул (4), (6) были получены представленные в таблице значения соответствующих временных постоянных. Идентифицированная наряду со среднеполювым вкладом вторая компонента ФО обладает энергией главного пика, лежащей на 17 мэВ ниже значения первого вклада. Соответствующие оптические переходы должны быть, видимо, связаны с модуляцией оптических переходов на дефектах или легирующих примесях.

В качестве третьего примера многокомпонентных структур, выбран спектр ФО, полученный на гомоэпитаксиальном образце n -GaAs/ n^+ -GaAs ($n(\text{Si}) = 1 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}/n^+(\text{Si}) = 1 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$, рис. 5–7). Экспериментальная фазовая диаграмма, построенная из представленных на рис. 5 спектров $X(E)$ и $Y(E)$, имеет весьма сложную структуру (см. рис. 7), из чего можно сделать вывод о многокомпонентном характере спектра.

Очевидно, что полученная от данного гомоэпитаксиального образца структура ФО состоит более чем из двух компонент. Фазовый анализ указывает на три энергетических области, в каждой из которых доминирует своя спектральная компонента. В отличие от рассматривавшегося выше примера экспериментальное выделение каждого из спектральных вкладов ФО не является возможным и осуществимо только с помощью полного математико-теоретического анализа.

На рис. 6 представлены подгонки формы спектра, в результате которой были идентифицированы три компоненты. Первая выделенная составляющая соответствует среднеполювому вкладу (ФКО/ФКО). Второй составляющей являются так называемые низкоэнергетические интерференционные осцилляции (НЭИО/ЛЕИО) [9–11], представляющие собой результат интерференции сигнала ФО от границы раздела в тонком ($d = 2.3$ мкм) гомоэпитаксиальном слое. В области энергии перехода E_0 была выявлена экситонная структура (о наблюдении экситонных структур ФО при комнатной температуре сообщается также в [12–14]). Для каждой из трех спектральных составляющих может быть построена ее собственная линейная фазовая диаграмма. Из представленных в нижней части рис. 7 однокомпонентных фазовых диаграмм явно видно отличие фазовых запаздываний отдельных спектральных составляющих.

Экспериментальная фазовая диаграмма, изображенная в верхней половине рис. 7, представляет собой типичную

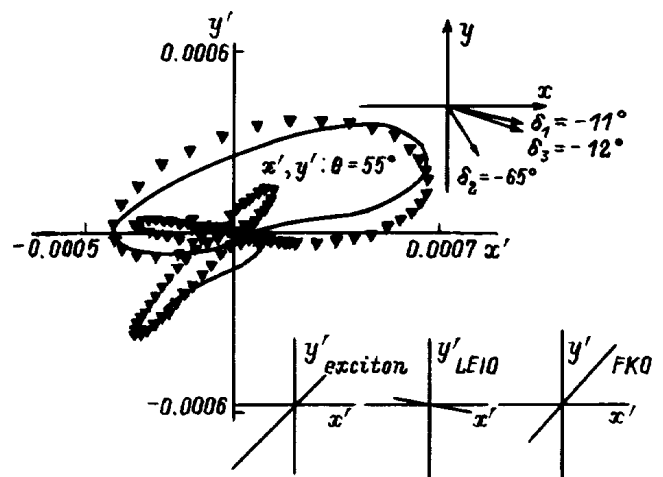


Рис. 7. Реконструкция (сплошная линия) экспериментальной фазовой диаграммы (треугольники), построенной из представленных на рис. 6 спектров. В нижней части рисунка представлены собственные линейные фазовые диаграммы каждой из трех составляющих спектральных компонент.

петлевую структуру, характерную для многокомпонентного спектра. Путем использования подгонок спектров фотоотражения полученных и для *X*, и для *Y* каналов ФЧУ была проведена реконструкция фазовой диаграммы, хорошо совпадающая с экспериментальной.

В таблице собраны полученные экспериментальные значения фазовых задержек и определенных из них характеристических временных постоянных идентифицированных спектральных компонент ФО. Из проведенного нами анализа обширных экспериментальных данных можно сделать вывод о том, что наименьшими временными постоянными в каждом спектре обладают экситонные компоненты, Напротив, компоненты ФО, соответствующие оптическим переходам с участием дефектов или легирующих примесей и низкоэнергетическим интерференционным осцилляциям, обладают наибольшими временными постоянными относительно других компонент соответствующих спектров.

Дальнейшие исследования должны показать, каким образом относительно большие значения временных постоянных могут быть связаны с процессами перезарядки в приповерхностных областях рассматриваемых полупроводниковых структур. Такие исследования могут оказаться интересной областью применения фазочувствительной спектроскопии фотоотражения.

Список литературы

- [1] E.G. Seebauer. J. Appl. Phys., **66**, 4963 (1989).
- [2] H. Shen, M. Dutta, R. Lux, W. Buchwald, L. Fotiadis, R.N. Sacks. Appl. Phys. Lett., **59**, 321 (1991).
- [3] W. Zhou, M. Dutta, H. Shen, J. Pamulapati, B.R. Bennet, C.H. Perry, D.W. Weyburn. J. Appl. Phys., **73**, 1266 (1993).
- [4] V.L. Alperovich, A.S. Jaroshevich, H.E. Scheibler, A.S. Terekhov. Sol. St. Electron., **37**, 657 (1994).
- [5] D.E. Aspnes. Surf. Sci., **37**, 418 (1973).
- [6] М. Кардона. *Модуляционная спектроскопия* (М.: Мир, 1972).
- [7] H. Shen, Z. Hang, S.H. Pan, F.H. Pollak, J.M. Woodall. Appl. Phys. Lett., **52**, 2058 (1988).
- [8] T. Kanata, M. Matsunaga, H. Takakura, Y. Hamakava, T. Nishino. J. Appl. Phys., **66**, 358 (1989).
- [9] D. Huang, D. Mui, H. Morkoc. J. Appl. Phys., **66**, 358 (1989).
- [10] N. Kallergi, B. Roughani, J. Aubel, S. Sundaram. J. Appl. Phys., **68**, 4656 (1990).
- [11] H.K. Lipsanen, V.M. Airaksinen. Appl. Phys. Lett., **63**, 2863 (1993).
- [12] S. Adachi. Phys. Rev. B, **41**, 1003 (1990).
- [13] D. Nolte, M. Melloch. MRS Bulletin, March 1994, p. 44.
- [14] R. Wang, Desheng Jiang. J. Appl. Phys., **72**, 3826 (1992).

Редактор В.В. Чалдышев

Lock-in-phase analysis of photoreflectance spectra of GaAs

A.V. Gansha*[†], W. Kircher[†], R.V. Kusmenko*[†], J. Schreiber[†] and S. Hildebrandt[†]

* Voronezh State University,
394000 Voronezh, Russia

[†] Fachbereich Physik der Martin-Luther Universität
Halle-Wittenberg,
D-06108 Halle (Saale), Germany

Abstract By means of 2-channel lock-in-technique the photoreflectance (PR) signal phase dependence of E_0 transitions in GaAs samples was investigated. As the result of the detailed analysis of PR spectra, the spectral components and their synchronous phases were established. Time constants of the PR signal were calculated for the registered one- and multicomponent PR spectra. The time dependence $\Delta R/R_j \sim \pm \exp(-t/\tau_j)$ of PR signal was influenced by the retarded reaction of the semiconductor surface or interface electric fields on the photomodulation.

Fax: 049-345-55-25-158

E-mail: gansha@physik.uni-halle.de

e5caf@mucor.urz.uni-halle.de