

Пикосекундная кинетика фотоносителей в арсениде галлия с нанокластерами алюминия

© В.Я. Алешкин[¶], Н.В. Востоков, Д.М. Гапонова, В.М. Данильцев, А.А. Дубинов, З.Ф. Красильник, А.И. Корытин*, Д.И. Курицын, Д.А. Пряхин, В.И. Шашкин

Институт физики микроструктур Российской академии наук,
603950 Нижний Новгород, Россия

* Институт прикладной физики Российской академии наук,
603950 Нижний Новгород, Россия

(Получена 11 декабря 2006 г. Принята к печати 25 декабря 2006 г.)

Проведено исследование кинетики фотолюминесценции и отражения GaAs, содержащего кластеры Al. Время жизни фотоносителей в GaAs с кластерами Al в исследованных образцах было равно ~ 15 пс. Предложена простая модель для описания кинетики фотолюминесценции и коэффициента отражения.

PACS: 71.55.Eq, 78.55.Cr

1. Введение

Интерес к полупроводниковым материалам с наноразмерными металлическими включениями обусловлен потенциальными возможностями их применения. Например, „низкотемпературный“ GaAs (выращенный при пониженной температуре), имеющий включения кластеров As, используется для генерации и детектирования терагерцового излучения при воздействии на него субпикосекундными лазерными импульсами [1,2]. Как правило, в таких материалах время жизни неравновесных носителей существенно ниже, чем в обычном GaAs.

Предметом исследования данной работы является GaAs с включением нанокластеров Al, выращенный методом газовой эпитаксии из металлорганических соединений [3]. Ранее были проведены исследования структурных и электрических свойств этого материала [3,4], а также пикосекундной кинетики отражения. Настоящая работа посвящена исследованию кинетики фотолюминесценции (ФЛ) и ее сопоставлению с кинетикой отражения света для этого материала.

2. Экспериментальные результаты

Исследуемая структура выращивалась методом газовой эпитаксии из металлорганических соединений на подложке GaAs (100) [3]. Структура представляла собой эпитаксиальный слой GaAs, содержащий 9 слоев нанокластеров Al. Расстояние между слоями нанокластеров составляло ~ 100 нм. Более подробно описание структур с алюминиевыми нанокластерами и особенностей их формирования приведено в работах [3,4].

На рис. 1 представлен спектр фотолюминесценции структуры. Спектр был измерен при возбуждении непрерывным лазерным излучением с длиной волны $\lambda_{\text{exc}} = 532$ нм при мощности $P_{\text{exc}} = 500$ мВт. Возбуждающий пучок фокусировался на образце в пятно диаметром

~ 100 мкм (6.4 кВт/см²). Регистрация спектра проводилась при комнатной температуре при помощи решеточного спектрометра, оснащенного CCD-камерой. Пик в спектре фотолюминесценции соответствует энергии кванта, равной ширине запрещенной зоны GaAs.

Спектры кинетики фотолюминесценции были получены с помощью системы FOG-100 (femtosecond optically gated fluorescence kinetic measurement system) в комбинации с Ti-сапфировым лазером (Spectra-Physics Tsunami 3960, накачка Millennia VsJ). Межзонная фотолюминесценция в слоях Al-GaAs возбуждалась импульсами длительностью 80 фс, с энергией 1.61 эВ и частотой повторения 80.65 МГц. Интенсивность лазерного излучения изменялась от 450 до 35 мВ при помощи калиброванных нейтральных стеклянных светофильтров серии HC.

С помощью системы линз сигнал фотолюминесценции фокусировался на нелинейный кристалл β -бората бария (ВВО), в ту же точку фокусировался стробирующий импульс для получения суммарной частоты. Последний сигнал собирался линзой и отделялся от возбуждающего

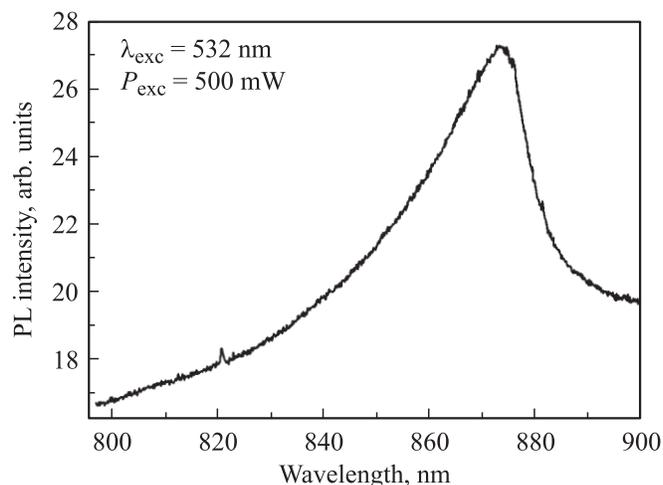


Рис. 1. Спектр фотолюминесценции (PL) GaAs с нанокластерами Al при комнатной температуре.

[¶] E-mail: aleshkin@ipm.sci-nnov.ru

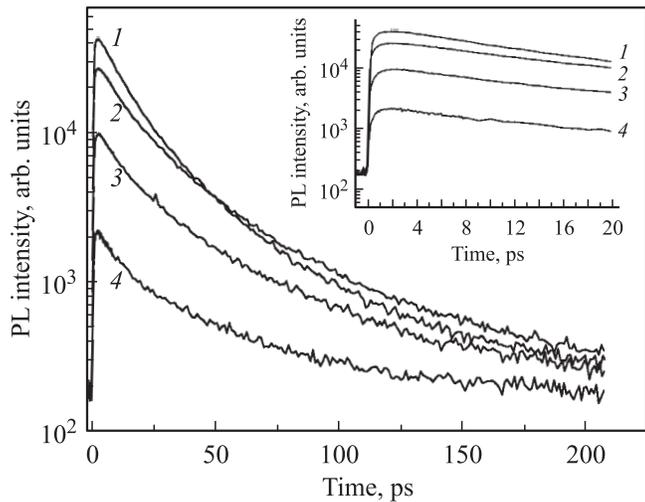


Рис. 2. Зависимости от времени интенсивности фотолуминесценции (PL) GaAs с нанокластерами Al при уровнях возбуждения 450 (1), 200 (2), 100 (3) и 35 мВт (4). На вставке — кинетика фотолуминесценции в интервале времени от 0 до 20 пс.

света диафрагмой, полосовым фильтром и двойным монохроматором, а затем детектировался фотоумножителем в режиме счета фотонов. При изменении временной задержки между возбуждающим и стробирующим импульсами была получена автокорреляционная функция установки и определено временное разрешение всей системы — 150 фс. Измерения проводились при комнатной температуре.

На рис. 2 показаны измеренные зависимости интенсивности фотолуминесценции на длине волны 870 нм от времени для структуры с нанокластерами Al. Из рисунка видно, что скорость спада ФЛ увеличивается с ростом мощности возбуждения. Кроме того, видно, что с течением времени скорость спада фотолуминесценции уменьшается. Можно описывать наблюдаемую зависимость интенсивности фотолуминесценции в виде

$$I(t) = I_0 \exp \left[- \int_{t_0}^t dt' / \tau(t') \right], \quad (1)$$

где время t_0 соответствует максимуму интенсивности ФЛ, а время $t = 0$ — началу воздействия лазерного импульса. Тогда $1/\tau(t)$ определяется производной по времени от логарифма интенсивности люминесценции, а $\tau(t)$ является „мгновенным“ временем жизни. Определенное таким образом время жизни в интервале от момента t_0 до 10 пс составляет ~ 14 пс для мощности возбуждения 450 мВт. Спустя 200 пс после импульса накачки для этой мощности возбуждения величина увеличивается до 120 пс. С уменьшением мощности накачки величина τ возрастает. Так, например, для мощности накачки 35 мВт $\tau(10 \text{ пс}) \approx 20$ пс и $\tau(200 \text{ пс}) \approx 250$ пс. Таким образом, можно констатировать, что „мгновен-

ное“ время жизни увеличивается по мере спада интенсивности фотолуминесценции во времени. Более того, кривые зависимости интенсивности ФЛ от времени для различных мощностей возбуждения пересекаются (см., например, кривые 1, 2 на рис. 2).

На вставке к рис. 2 показана кинетика фотолуминесценции в интервале времени от 0 до 20 пс. Видно, что время нарастания фотолуминесценции почти не зависит от мощности возбуждения. Для всех четырех мощностей накачки максимум мощности фотолуминесценции достигается при $t = 2$ пс. Отметим, что время нарастания ФЛ характеризуется временем заполнения фотоносителями состояний на краях зон.

На рис. 3 представлена кинетика изменения коэффициента отражения (ΔR) в результате воздействия на структуру лазерного импульса длительностью 250 фс с энергией 2 мДж и длиной волны 795 нм. Время $t = 0$ соответствует окончанию воздействия импульса накачки. Плотность потока энергии возбуждающего импульса на образце была порядка 10^{10} Вт/см². Измерения были проведены методом субпикосекундной отражательной абсорбционной спектроскопии с возбуждающими и пробными импульсами. Возбуждающий и зондирующий импульсы имели одинаковую длину волны и длительность, и излучение было линейно поляризованным. На рис. 3 данные 1 соответствуют взаимно параллельным поляризациям излучения возбуждающего и зондирующего импульсов. Данные 2 соответствуют случаю, когда эти поляризации взаимно перпендикулярны. Угол падения зондирующего излучения был равен углу Брюстера, а его вектор электрического поля лежал в плоскости падения. Максимальное индуцированное относительное изменение коэффициента отражения $\Delta R/R$ при нормальном падении составляло $(1-2) \cdot 10^{-3}$. Из рис. 3 видно, что характерное время, за которое коэффициент отражения почти полностью возвращается к равновесному значению, составляет величину 2–4 пс.

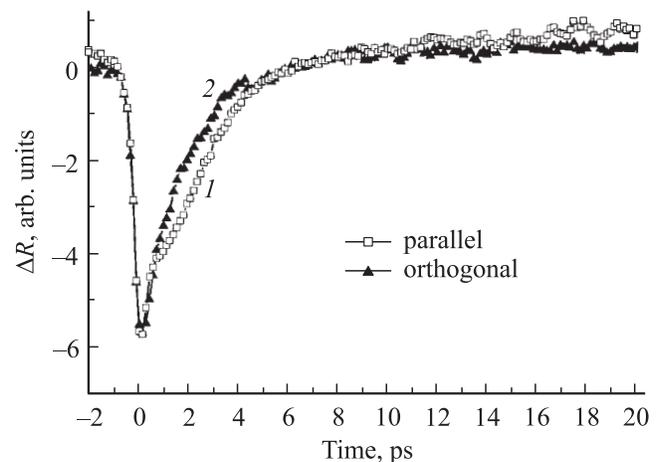


Рис. 3. Зависимость от времени изменения коэффициента отражения ΔR при двух поляризациях возбуждающего импульса: 1 — вектор электрического поля в плоскости падения, 2 — перпендикулярен плоскости падения.

3. Обсуждение результатов

Для того чтобы выявить влияние металлических кластеров на время жизни неравновесных фотовозбужденных носителей, интересно сравнить эволюцию ФЛ структуры, содержащей кластеры (рис. 2), и ФЛ подложки, на которой была выращена структура (рис. 4). Для ФЛ подложки τ на начальном участке спада не зависит от мощности возбуждения и составляет ~ 45 пс. На временах ~ 200 пс величина τ зависит от мощности накачки и примерно одинакова для подложки и структуры. Отметим, что при больших временах основной вклад в сигнал фотолуминесценции вносит излучение из глубоких слоев полупроводника, где отсутствуют центры безызлучательной рекомбинации, связанной с металлическими кластерами или поверхностью, и где время жизни неравновесных носителей велико. Поскольку коэффициент поглощения света составляет $\sim 10^4 \text{ см}^{-1}$, в слое толщиной 1 мкм сосредоточено около 63% всех фотоносителей. На малых временах основной вклад в ФЛ дает эта приповерхностная область, где время жизни фотоносителей мало. Сопоставляя времена гашения ФЛ на начальном этапе, можно заключить, что в материале с кластерами времена жизни неравновесных носителей примерно в 3 раза меньше времен жизни, измеренных для подложки. Кроме того, времена жизни в структуре уменьшаются с ростом мощности возбуждения. На вставке к рис. 4 показана кинетика фотолуминесценции подложки в интервале времен от 0 до 20 пс. Максимум интенсивности ФЛ достигается при временах от 2 до 4 пс, что превосходит соответствующее время для структуры с Al-кластерами.

Обсудим причину изменения коэффициента отражения. Из рис. 3 видно, что коэффициент отражения изменяется за времена нарастания ФЛ. При этом он сначала

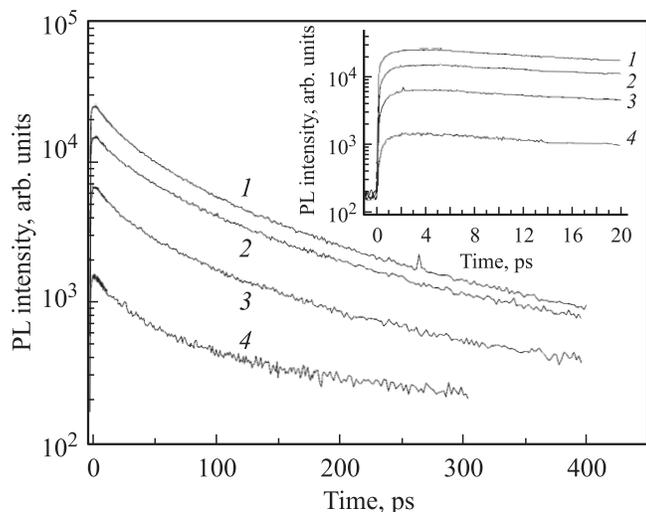


Рис. 4. Зависимость от времени интенсивности фотолуминесценции (PL) подложки GaAs, на которой выращена структура с нанокластерами Al, при уровнях возбуждения 430 (1), 200 (2), 100 (3) и 35 мВт (4). На вставке — кинетика фотолуминесценции в интервале времени от 0 до 20 пс.

резко убывает за время, примерно равное длительности импульса возбуждения, а затем за время 2–4 пс почти возвращается к исходному значению. Коэффициент отражения определяется значением диэлектрической проницаемости, которую можно представить в виде

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + \frac{4i\pi\sigma(\omega)}{\omega}, \quad (2)$$

где ε_0 — диэлектрическая проницаемость до воздействия лазерного импульса, $\sigma(\omega)$ — проводимость, обусловленная фотовозбужденными носителями заряда, ω — циклическая частота света. Используя модель Друде, проводимость можно представить в виде

$$\sigma(\omega) = en \frac{\mu_n}{1 - i\omega\tau_n} + ep \frac{\mu_p}{1 - i\omega\tau_p}, \quad (3)$$

где n — концентрация электронов, p — концентрация дырок, $\mu_{n,p}$ — подвижности электронов и дырок, $\tau_{n,p}$ — времена релаксации импульса электронов и дырок. Поскольку частота столкновений много меньше циклической частоты света, то выполнено условие $\omega\tau_{n,p} \gg 1$. Поэтому

$$\varepsilon \approx \varepsilon_0 - \frac{4\pi en}{\omega^2} \left(\frac{\mu_n}{\tau_n} + \frac{\mu_p}{\tau_p} \right). \quad (4)$$

Из (4) видно, что с ростом концентрации электронов и дырок (мы полагаем, что их концентрации равны) диэлектрическая проницаемость уменьшается, и поэтому уменьшается коэффициент отражения во время действия возбуждающего лазерного импульса. Из сопоставления рис. 2 и 3 видно, что увеличение коэффициента отражения происходит примерно за время нарастания ФЛ. Время нарастания ФЛ, соответствующей рекомбинации носителей между состояниями на краях зон, определяется временем заполнения этих состояний фотоносителями, которое зависит от процессов термализации.

Каковы причины увеличения коэффициента отражения и ε при остывании носителей? Уменьшение проводимости, которое приводит к росту коэффициента отражения и ε , может быть обусловлено быстрым захватом горячих носителей в металлические нанокластеры или локализованные состояния, находящиеся в полупроводнике вблизи границы с кластерами [5]. Существование таких состояний связано с присутствием на границе металл-полупроводник структурных дефектов, возникших во время роста из-за несогласованности кристаллических решеток нанокластеров Al и GaAs. При этом предполагается наличие высокой плотности состояний для энергий, соответствующих разрешенным зонам. Будем полагать, что нанокластеры и вышеупомянутые локализованные состояния являются центрами быстрой безызлучательной рекомбинации, и поэтому захваченные на них носители не дают вклада в диэлектрическую проницаемость. Фотовозбужденные горячие носители заряда либо захватываются на центры безызлучательной рекомбинации, не успев отдать значительную часть избыточной энергии, либо остывают, оставаясь свободными. Сопоставление времен нарастания ФЛ структуры

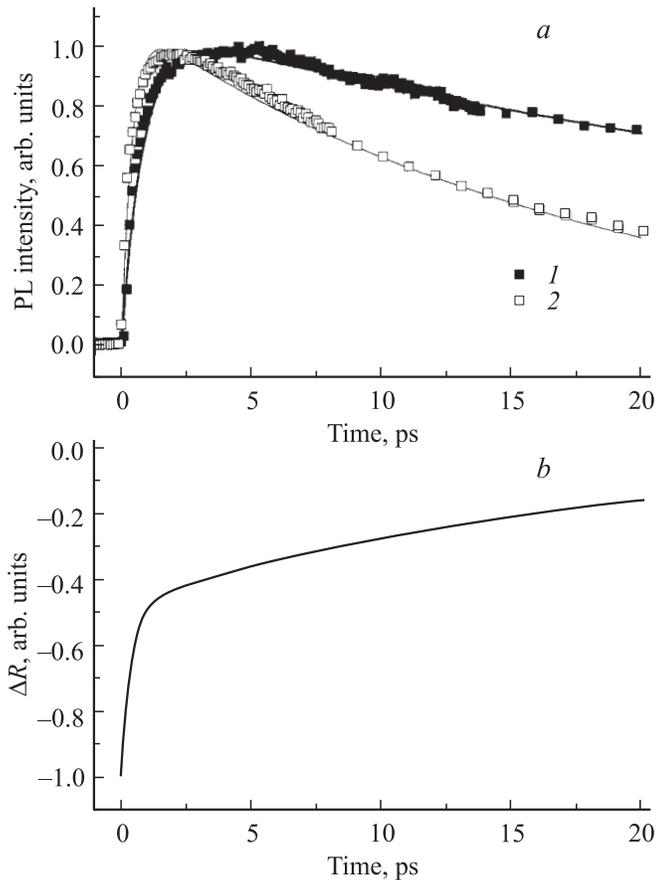


Рис. 5. *a* — временные зависимости интенсивности фотолюминесценции (PL) структур без нанокластеров и с нанокластерами: точки — экспериментальные значения для подложки (1) и структуры с кластерами (2), сплошные линии — расчет. *b* — рассчитанная зависимость от времени изменения коэффициента отражения ΔR .

с кластерами Al и подложки (см. вставки к рис. 2 и 4) показывает, что это время меньше для структуры с кластерами. Этот факт может быть объяснен процессом быстрого захвата горячих фотоносителей центрами безызлучательной рекомбинации.

Запишем уравнения баланса для горячих и термализованных носителей для времени после окончания действия импульса возбуждения (момент времени $t = 0$):

$$\frac{dn_1}{dt} = -n_1(v_1 + v_2), \quad (5)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = n_1v_1 - n_2v_3. \quad (6)$$

Здесь n_1 — концентрация горячих фотоносителей, n_2 — концентрация остывших (термализованных) фотоносителей; $1/v_1$, $1/v_2$, $1/v_3$ — времена остывания, захвата на центры безызлучательной рекомбинации и время жизни остывших носителей соответственно. Отметим, что вклад в v_3 вносят процессы как излучательной, так и безызлучательной рекомбинации. Поскольку длительность импульса возбуждения меньше характерного

времени рассеяния, начальные условия для решения этой системы имеют простой вид: $n_1(0) = n_0$, $n_2(0) = 0$, где n_0 — концентрация фотоносителей, рожденных импульсом возбуждения. Решение уравнений (5), (6) имеет вид

$$n_1(t) = n_0 \exp[-t(v_1 + v_2)], \quad (7)$$

$$n_2(t) = n_0 \frac{v_1}{v_1 + v_2 - v_3} \{ \exp(-tv_3) - \exp[-t(v_1 + v_2)] \}. \quad (8)$$

Интенсивность фотолюминесценции в момент времени t пропорциональна $n_2(t)$, а изменение коэффициента отражения $-\Delta R(t)$ пропорционально концентрации свободных носителей $n_1(t) + n_2(t)$.

На рис. 5, *a* показаны временные зависимости интенсивности фотолюминесценции структур без нанокластеров и с нанокластерами. Экспериментальным значениям соответствуют точки (1 — ФЛ подложки, 2 — ФЛ структуры с кластерами), а рассчитанным — сплошные линии. Все зависимости нормированы на свое максимальное значение. Частоты v_i ($i = 1, 2, 3$) подбирали исходя из лучшего соответствия измеренных и рассчитанных зависимостей. Для расчета зависимостей были использованы следующие параметры: $1/v_1 = 0.8$ пс, $1/v_2 = 0.7$ пс, $1/v_3 = 18.3$ пс для структуры с кластерами и $1/v_1 = 0.8$ пс, $v_2 = 0$ (поскольку отсутствует захват горячих носителей на центры безызлучательной рекомбинации), $1/v_3 = 50$ пс для подложки. Экспериментальные данные на рис. 5, *a* соответствуют мощности возбуждения 200 мВт. На рис. 5, *b* показана рассчитанная зависимость изменения коэффициента отражения от времени. Она качественно соответствует измеренной зависимости, приведенной на рис. 3. Отсутствие количественного совпадения связано с грубостью модели.

4. Заключение

Основные выводы работы сводятся к следующему.

Время жизни неравновесных носителей в арсениде галлия с нанокластерами Al равно ~ 15 пс. Эволюция во времени коэффициента отражения в этих структурах определяется не временем жизни фотоносителей, а временами захвата на центры безызлучательной рекомбинации, обусловленные встроенными в GaAs металлическими нанокластерами. Предложена простая модель, которая количественно описывает кинетику фотолюминесценции и качественно — эволюцию во времени коэффициента отражения. Отметим, что времена изменения проводимости составляют величины порядка 1 пс. Благодаря таким малым временам исследуемый материал может использоваться для генерации излучения терагерцового диапазона при возбуждении тока фотопроводимости в антенной электродинамической системе фемтосекундными лазерными импульсами либо излучением двух непрерывных лазеров оптического диапазона с близкими частотами на разностной частоте.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 06-02-16474), CRDF Y3-P-01-04, программ президиума РАН „Фемтосекундная оптика и физика сверхсильных лазерных полей“ и „Электромагнитные волны терагерцового диапазона“.

Список литературы

- [1] A.C. Warren, J.M. Woodall, J.L. Freeout, D. Grischkowsky, D.T. McInturff, M.R. Melloch, N. Otsuka. *Appl. Phys. Lett.*, **57**, 1331 (1990).
- [2] K.G. Gan, J.W. Shi, Y.H. Chen, C.K. Sun, Y.J. Chiu, J.E. Bowers. *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 4054 (2002).
- [3] Н.В. Востоков, В.М. Данильцев, М.Н. Дроздов, Ю.Н. Дроздов, А.В. Мурель, В.И. Шашкин. *Изв. РАН. Сер. физ.*, **68**, 55 (2004).
- [4] Н.В. Востоков, С.А. Гусев, В.М. Данильцев, М.Н. Дроздов, Ю.Н. Дроздов, А.И. Корытин, А.В. Мурель, В.И. Шашкин. *ФТП*, **39**, 92 (2005).
- [5] R.T. Tung. *Mater. Sci. Engin.*, **R 35**, 1 (2001).

Редактор Л.В. Шаронова

Picosecond kinetics of photocarriers in gallium arsenide with aluminium nanoclusters

V.Ya. Aleshkin, N.V. Vostokov, D.M. Gaponova, V.M. Daniltsev, A.A. Dubinov, Z.F. Krasil'nik, A.I. Korytin, D.I. Kuritsyn, D.A. Pryakhin, V.I. Shashkin*

Institute for Physics of Microstructures,
Russian Academy of Sciences,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

* Institute of Applied Physics,
Russian Academy of Sciences,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

Abstract The photoluminescence and reflectance kinetics of GaAs containing Al clusters have been investigated. The measured photocarrier lifetime in investigated samples of GaAs with Al clusters was ~ 15 ps. The simple model is suggested to describe the kinetics of photoluminescence and reflectance.