

文章编号: 0258-7025(2009)02-0328-05

利用时域太赫兹波谱法的超高电场下砷化镓内能带耦合现象研究

朱亦鸣^{1,2} 张大伟¹ 何波涌² 庄松林¹

(¹ 上海理工大学光学与电子信息工程学院, 上海 200093; ² 上海交通大学微电子学院, 上海 200240)

摘要 利用时域太赫兹波谱系统,研究了超高电场下砷化镓中的非平衡载流子的动态运动过程。研究发现,当电场小于 50 kV/cm 时,电子运动所辐射出的太赫兹波信号的最初峰值 ΔE_{THz} (对应电子在 Γ 谷中的加速)随着电场的增加不断增大;当电场大于 50 kV/cm 时, ΔE_{THz} 随着电场的增大逐渐衰减并最终达到饱和。这一实验结果表明,当电场强度大于 50 kV/cm 时,由砷化镓中的电子的有效加速质量随着电场的增加而显著地增加(在 300 kV/cm 的情况下电子的有效加速质量约为低电场时的 30 倍)。导致这一结果的原因是在超高电场的情况下砷化镓中的能带会发生强烈的混合。

关键词 测量; 电子飞秒加速; 非平衡载流子; 时域太赫兹波谱法

中图分类号 O473 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL20093602.0328

Strong Band Mixing in Bulk GaAs under High Electric Field Investigated by Time-Domain Terahertz Spectroscopy

Zhu Yiming^{1,2} Zhang Dawei¹ He Boyong² Zhuang Songlin¹

¹ College of Optics and Electron Information Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China
² School of Microelectronics, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200240, China

Abstract Nonequilibrium transport of carriers in bulk GaAs under very high electric fields is investigated by time-domain terahertz (THz) emission spectroscopy. It is found that the initial peak height of THz emission waveforms (ΔE_{THz}), which are corresponding to the acceleration of electrons in the Γ valley, gradually increases with increasing bias electric fields F_0 , for $F_0 < 50$ kV/cm and saturates at ~ 1 THz above 50 kV/cm. The experimental results show that the effective acceleration mass of electrons under high electric fields significantly increases with increasing fields (30 times at 300 kV/cm than low bias electric fields), most likely due to strong band mixing under very high fields.

Key words measurement; femtosecond electron acceleration; nonequilibrium carriers; time-domain terahertz spectroscopy

1 引言

近几年随着超小电子器件的发展,超快的三极管的工作频率已经超过了 500 GHz^[1]。在此类器件中,载流子在沟道中的输运方式是非平衡状态下的弹道加速模式而不是传统的扩散模式。因此研究高场下半导体内非平衡载流子的超快输运被视为设计超高速电子器件的关键所在,正受到半导体物理学和工业界的广泛关注。

虽然已有不少文章报道了高电场下半导体内电

子的稳态运动^[2~6],但只有少数是关于电子的非平衡动态运动的^[7~12]。近年随着太赫兹技术的发展^[13,14],科学家们利用时域太赫兹波谱法^[15~17]观察到了亚皮秒尺度下电子的动态运动。如 1999 年德国科学家 Leitenstorfer 等^[9,10]利用探测到的高电场加速半导体内电子产生的太赫兹波(E_{THz}),再结合电子运动所辐射出的 E_{THz} 与电子的加速度成正比这一事实,首先在实验上观测到了在 10 fs 尺度下电子的过热现象。

收稿日期: 2008-09-04; 收到修改稿日期: 2008-11-19

作者简介: 朱亦鸣(1979—),男,副教授,主要从事太赫兹波的应用和半导体内非平衡载流子的动态运动等方面的研究。

E-mail: ymzhu@usst.edu.cn

本文利用时域太赫兹波谱法,通过飞秒脉冲激光激发本征超纯砷化镓层中的电子和空穴对,收集并探测被电场加速而高速运动的电子所辐射出的太赫兹波,从而研究高电场下砷化镓中载流子的非平衡输运过程。

2 实 验

实验采用的两块样品是使用分子束外延技术(MBE),在 n 型的砷化镓基板上(001)方向生长未掺杂的本征砷化镓层而形成的二极管。样品 1 为 m-i-n 型结构的二极管,其中间的本征砷化镓层厚 $1\ \mu\text{m}$ 。样品 2 也为 m-i-n 型结构的二极管,其中间的本征砷化镓层厚 180 nm。为了能让激光照射到样品的本征超纯砷化镓层来激发电子空穴对,使用半透明的 NiCr 合金蒸发在本征超纯砷化镓层表面来形成肖特基势垒。同时,AuGeNi 合金蒸发在 n 型的砷化镓基板背面,形成欧姆接触。外加电场通过 NiCr 和 AuGeNi 形成的电极加在本征超纯砷化镓层上。

重复频率为 76 MHz 的 Ti:sapphire 锁模飞秒激光器产生脉冲半峰全宽(FWHM)为 110 fs 的脉冲入射到样品上,用于激发本征超纯砷化镓层中的电子和空穴对。飞秒脉冲光的平均功率约为 10 mW,照射到窗口大小约为 $0.5\ \text{mm} \times 1.0\ \text{mm}$ 的样品表面。在这样的激发条件下,在本征超纯砷化镓层内,

产生的电子密度约为 $5 \times 10^{14}\ \text{cm}^{-3}$,从而能有效地避免 Screening 效应。入射的飞秒脉冲的中心波长在室温下(300 K)为 871 nm,在低温情况下(10 K)为 818 nm。这样激光脉冲的中心能量正好能保证激发的电子在砷化镓导带底部(空穴在价带的底部)。从样品中辐射出的太赫兹电磁场的时域波形通过电光取样的方法记录下来。实验使用 $100\ \mu\text{m}$ 厚的 ZnTe 晶体作为探测器,其响应频谱范围约为 $0 \sim 4\ \text{THz}$ ^[18~20]。通过测量样品的强度与电压($I-V$)曲线,可以推算出样品本身的肖特基势垒的高度约为 0.72 eV(300 K),从而准确地估算出样品的内建电场(内建电场强度为样品本身的肖特基势垒所产生的电场和外加电场的总和)。另外,由于砷化镓中空穴的有效质量远大于电子,可认为空穴相对于电子来说几乎是静止的,所探测到的太赫兹电磁场信号是由电子的加速、减速运动单方面引起的。

具体的实验装置(时域太赫兹波谱系统)如图 1 所示。100 fs 左右的飞秒脉冲激光被分束镜分成抽运光和探测光。抽运光照射到砷化镓样品上,激发出本征超纯砷化镓层中的电子和空穴对。电子和空穴对被外加电场加速,并向空间辐射出电磁波。空间电磁波被收集,和探测光一起被聚焦在 ZnTe 电光晶体上,运用电光取样技术,探测空间电磁波 E_{THz} ,从而得到电子的动态运动状态(加速、减速)。

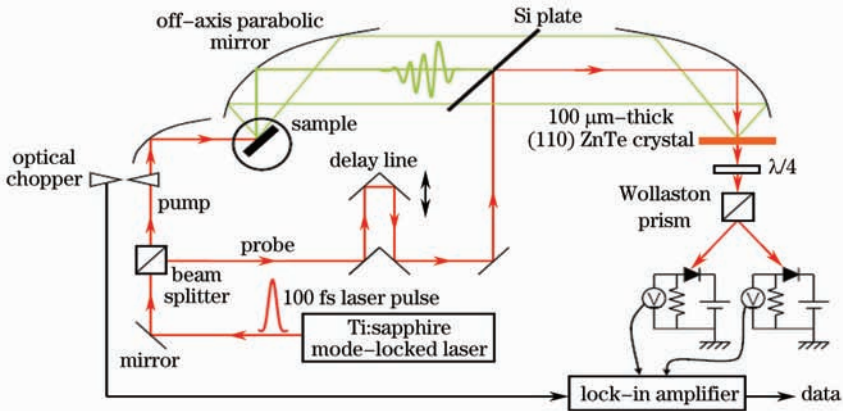


图 1 时域太赫兹波谱系统实验装置图

Fig. 1 Experimental setup of the time-domain terahertz spectroscopy system

3 实验结果与讨论

300 K 时样品 1(包含 $1\ \mu\text{m}$ 厚的本征超纯砷化镓层的 m-i-n 型二极管)和样品 2(包含 180 nm 厚的本征超纯砷化镓层的 m-i-n 型二极管)在不同外加电场 F 下辐射出的太赫兹电磁场的时域波形如图 2

所示。一般情况下,时域波形的原点($t=0$)非常难确定。实验采用熵最大法(Maximum entropy method)^[21~23]来定义波形的时间原点如图 2 所示。确定的太赫兹电磁场时域波形原点($t=0$)的误差为 $\pm 30\ \text{fs}$ 。

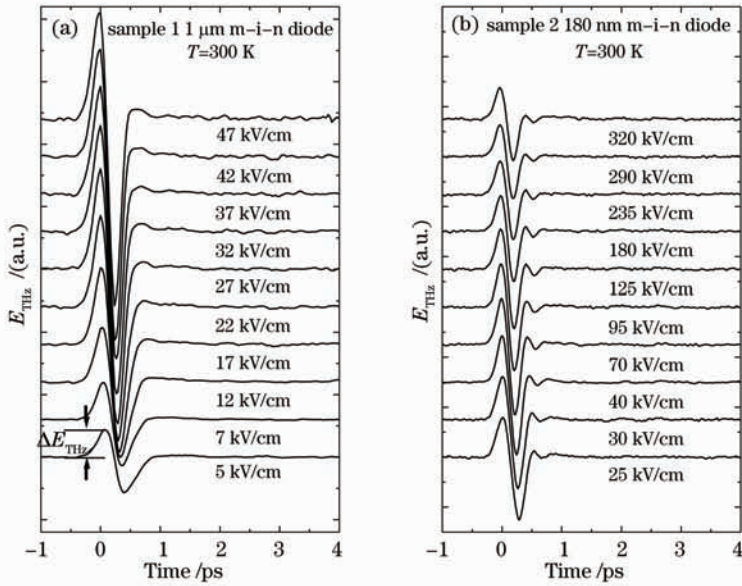


图 2 300 K 时,不同样品不同外加电场 F 下辐射出的太赫兹电磁场的时间域波形。(a)样品 1; (b)样品 2

Fig. 2 Temporal waveforms of THz electric field (E_{THz}) emitted from m-i-n diodes at 300 K and different bias electric fields for (a) sample 1; (b) sample 2

从图 2 可以清楚地看到砷化镓样品辐射出的太赫兹波有着双峰特性:一个初始的峰值和一个随后的谷值。这一现象来自于砷化镓中电子速度的过热效应^[9]。此外还发现,当外加电场 $F < 50$ kV/cm 时, E_{THz} 的幅度随着电场的增加而增加;当外加电场 $F > 50$ kV/cm 时, E_{THz} 的幅度随着电场的增加而逐步减小。

受飞秒脉冲激光激发的载流子被电场加速,将形成瞬时电流 J ,并同时向空间辐射出电磁波。从麦克斯韦方程中,知道瞬时电流 J 和电磁波 E_{THz} 之间的关系可以表达为

$$E_{\text{THz}} \propto \frac{\partial J}{\partial t}. \quad (1)$$

采用经典力学中的电子有效质量近似模型,在 Γ 谷谷底, E_{THz} 可以表达为

$$E_{\text{THz}} \propto \frac{eF}{m_r^*}, \quad (2)$$

其中 m_r^* 为电子在 Γ 谷中的有效质量, e 为电子的电量。因此,如果 m_r^* 是常数,则 E_{THz} 应该与电场强度 F 成正比。

由于瞬时电流 J 与载流子的速度成正比,因此,可以认为 E_{THz} 与载流子的加速度成正比,即电子的加速度与其所辐射出来的空间电磁波的强度成正比。所以由电子运动所辐射出来的太赫兹波 E_{THz} 的正值表示电子的加速,负值表示电子的减速。基于此, E_{THz} 的初始的峰值可以被解释为电子在 Γ

谷中的加速,而随后的谷值可以解释为电子由于被谷间散射,从 Γ 谷到了 X 和 L 谷,因为电子的有效质量 ($m_r^* = 0.067m_0$; $m_L^* = 0.35m_0$) 的突然加大而发生的减速。

图 3 显示了从样品 1(实心圆连线表示)和样品 2(实心方块连线表示)中所辐射出的太赫兹波中的最初加速信号 ΔE_{THz} 和电场 F 的关系(以脉冲激光激发的载流子的数量为标准,对太赫兹波的幅度进行归一化)。当电场强度 $F < 50$ kV/cm 时,和(2)式

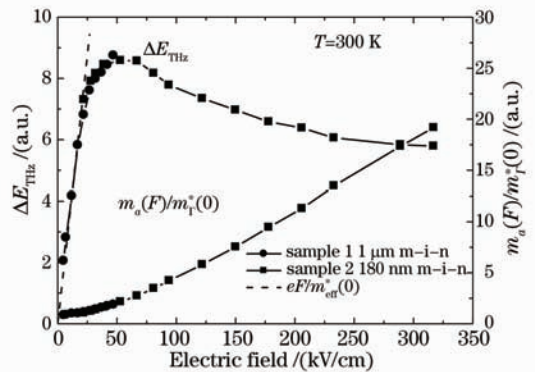


图 3 太赫兹加速信号最初的峰值 ΔE_{THz} 、电子的有效加速质量 ($m_a^*(F) \equiv eF/\Delta E_{\text{THz}}$) 和电场 F 的关系;样品 1(实心圆连线)和样品 2(实心方块连线)

Fig. 3 Initial peak height of THz emission waveform (ΔE_{THz}) and the acceleration mass [$m_a^*(F) \equiv eF/\Delta E_{\text{THz}}$] determined as a function of bias electric field (F) for sample 1 (circles line) and sample 2 (squares line)

中预期的电子在 Γ 谷加速情况一样, ΔE_{THz} 随着电场的增加线性地增加。然而, 当 $F > 50$ kV/cm 时, ΔE_{THz} 随着电场的增加逐渐衰减并最终达到饱和。

在此定义电子的有效加速质量 $m_a^*(F) \equiv eF/\Delta E_{\text{THz}}$ 。不同电场 F 下电子的有效加速质量如图 3 中点划线所示。可以看见, m_a^* 随着电场的增加而增加, 当 $F=300$ kV/cm 时, m_a^* 为低电场时候的 20 倍左右。

到目前为止, 我们还不是很确定电子有效加速质量增大的物理本质。历史上, 的确也有科学家在理论上得出在极高电场下、极短时间内, 半导体内的电子的有效质量会发生变化。在经典力学中, 人们采用电子有效质量近似模型, 认为半导体中的电子的有效质量为

$$m_{\text{eff}}^*{}^{-1} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 F}{\partial k^2}. \quad (3)$$

然而, 在极高电场下, 这样的有效质量近似模型可能发生问题。处在周期性势场中的 Bloch 电子被外加高电场加速时, 在极短时间内, 其有效质量应近似等同于自由电子的质量^[24~26]。

在这些理论研究的基础上, 我们认为电子的有效加速质量的显著增大其物理本质极有可能是高电场下, 砷化镓中的能带发生混合造成的。在如此高电场的情况下, Wannier-Stark ladder 将形成, 相邻的 Wannier-Stark 本征能级之间的能量间隔为 eFa (其中 a 为晶格常数, 在砷化镓中为 0.56 nm); 而在每个 Wannier-Stark 的本征能级上, 电子能量的不确定性应和电子被散射的时间成反比 (常温下在砷化镓中电子的平均散射时间主要由纵光学声子的散射率决定, 约为 0.15 ps), 其值约为 3 meV。我们发现, $F=50$ kV/cm 是一个非常特殊的电场强度。当电场 $F > 50$ kV/cm 时, 相邻的 Wannier-Stark 本征能级之间的能量间隔将大于本征能级上电子能量的不确定性。这个时候, Wannier-Stark ladder 将形成, 电子将围绕某个 Wannier-Stark 本征能级以本征波函数形式进行传播 (运动), 而非实物粒子形式。在高电场情况下, Γ 谷内电子的本征波函数将非常容易穿透到 $L(X)$ 谷中, 并和 $L(X)$ 谷中的波函数发生强烈的耦合, 从而改变电子波函数中参数 m_r^* 的值, 即改变了电子初始的有效质量。

4 结 论

借助时域太赫兹谱方法, 探测砷化镓中被电场加速而高速运动的载流子所辐射出的太赫兹波, 对

高电场下砷化镓中的非平衡电子的飞秒加速进行了全面的研究。发现当电场小于 50 kV/cm 时, 由砷化镓中电子的加速所引起的太赫兹信号的最初的峰值 ΔE_{THz} (成正比于电子在 Γ 谷的加速), 随着电场的增大而线性增大。当电场大于 50 kV/cm 时, ΔE_{THz} 随着电场的增大而衰减最终达到饱和。这一现象表明在高电场下, 砷化镓中的电子的有效加速质量随着电场增加而显著地增加。导致这一结果的原因是随着电场的增大, 砷化镓中的能带发生强烈的混合, 从而造成了电子的有效加速质量的增大。

致谢 感谢日本东京大学生产技术研究所 K. Hirakawa 研究室为我们提供的样品。同时, 也感谢 A. Leitenstorfer 教授和 L. Reggiani 教授在实验和理论方面给予指导。

参 考 文 献

- 1 Y. Yamashita, A. Endoh, K. Shinohara *et al.*. Pseudomorphic $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}/\text{In}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ HEMTs with an ultrahigh f_T of 562 GHz[J]. *IEEE Electron. Dev. Lett.*, 2002, **23**(10): 573~575
- 2 P. Das, R. Bharat. Hot electron relaxation times in two-valley semiconductors and their effect on bulk-microwave oscillators[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1967, **11**(12): 386~388
- 3 J. G. Ruch, G. S. Kino. Measurement of the velocity-field characteristic of gallium arsenide[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1967, **10**(2): 40~42
- 4 H. D. Rees. Calculation of distribution functions by exploiting the stability of the steady state[J]. *J. Phys. Chem. Solids*, 1969, **30**: 643~655
- 5 H. D. Rees. Hot electron effects at microwave frequencies in GaAs[J]. *Solid State Commun.*, 1969, **7**: 267~269
- 6 P. J. Bulman, G. S. Hobson, B. C. Taylor. Transferred Electron Devices[M]. London and New York: Academic Press, 1972
- 7 Wang Guangchang, Chen Tao, Zhang Ting *et al.*. Hot electron generation and transport in intense field physics[J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(2): 216~220
王光昶, 陈涛, 张婷等. 强场物理中超热电子的产生及输运[J]. *中国激光*, 2008, **35**(2): 216~220
- 8 Hang Shihua, Li Xi, Ling Yan *et al.*. Study of ultrafast process in semiconductor[J]. *J. Infrared and Millimeter Waves*, 2005, **24**(3): 179~181
黄仕华, 李汐, 凌严等. 半导体中超快过程的研究[J]. *红外与毫米波学报*, 2005, **24**(3): 179~181
- 9 A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah *et al.*. Femtosecond charge transport in polar semiconductors[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **82**(25): 5140~5143
- 10 A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah *et al.*. Femtosecond high-field transport in compound semiconductors[J]. *Phys. Rev. B*, 2000, **61**(24): 16642~16652
- 11 M. Abe, S. Madhavi, Y. Shimada *et al.*. Transient carrier velocities in bulk GaAs: Quantitative comparison between terahertz data and ensemble Monte Carlo calculations[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2002, **81**(4): 679~681
- 12 Shi Xiaoxi, Zhao Guozhong, Zhang Cunlin *et al.*. Terahertz radiation properties of low-temperature grown GaAs photoconductive antenna[J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(3):

- 396~400
石小溪,赵国忠,张存林等. 低温生长砷化镓光电导天线产生太赫兹波的辐射特性[J]. 中国激光, 2008, **35**(3): 396~400
- 13 Tian Zhen, Wang Changlei, Li Yanfeng *et al.*. Compact THz time-domain spectroscopy based on photonic crystal fiber femtosecond laser[J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(3): 477
田震,王昌雷,栗岩锋等. 基于光子晶体光纤飞秒激光器的紧凑型太赫兹时域光谱仪[J]. 中国激光, 2008, **35**(3): 477
- 14 Zheng Fanghua, Liu Huan, Li Xifu *et al.*. Simultaneous dual-wavelength quasi-continuous-wave laser-diode-end-pumped Nd:YAG laser for terahertz wave source[J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(2): 200~205
郑芳华,刘欢,李喜福等. 产生太赫兹辐射源的Nd:YAG双波长准连续激光器[J]. 中国激光, 2008, **35**(2): 200~205
- 15 Zhang Xingning, Chen Ji, Zhou Zekui. THz time-domain spectroscopy technology[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2005, **42**(7): 35~38
张兴宁,陈稷,周泽魁. 太赫兹时域光谱技术[J]. 激光与光电子学进展, 2005, **42**(7): 35~38
- 16 Ma Chengju, Chen Yanwei, Xiang Jun *et al.*. Progress in generation of terahertz radiation[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2007, **44**(4): 56~61
马成举,陈延伟,向军等. 太赫兹辐射产生技术进展[J]. 激光与光电子学进展, 2007, **44**(4): 56~61
- 17 Zhang Yinghua, Liu Yupu, Lu Peihua *et al.*. Picosecond electro-optic sampling[J]. *Chinese J. Lasers*, 1992, **A19**(3): 176~179
张影华,刘玉璞,陆培华等. ps超高速光电采样[J]. 中国激光, 1992, **A19**(3): 176~179
- 18 Q. Wu, X.-C. Zhang. Free-space electro-optics sampling of mid-infrared pulses[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **71**(10): 1285~1286
- 19 Q. Wu, X.-C. Zhang. 7 terahertz broadband GaP electro-optic sensor[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**(14): 1784~1786
- 20 A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah *et al.*. Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling; Experiment and theory[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **74**(11): 1516~1518
- 21 E. M. Vartiainen, K.-E. Peiponen, T. Asakura. Phase retrieval in optical spectroscopy: Resolving optical constants from power spectra[J]. *Appl. Spectrosc.*, 1996, **50**(10): 1283~1289
- 22 E. M. Vartiainen, Y. Ino, R. Shimano *et al.*. Numerical phase correction method for terahertz time-domain reflection spectroscopy[J]. *J. Appl. Phys.*, 2004, **96**(8): 4171~4175
- 23 E. Gornov, E. M. Vartiainen, K.-E. Peiponen. Comparison of subtractive Kramers-Kronig analysis and maximum entropy model in resolving phase from finite spectral range reflectance data[J]. *Appl. Opt.*, 2006, **45**(25): 6519~6524
- 24 R. Peierls. Bemerkungen zur theorie der metalle[J]. *Z. Physik*, 1934, **88**: 786~791
- 25 D. Pfirsch, E. Spenke. Die effektive masse eines kristallelektrons und das Ehrenfestsche theorem[J]. *Z. Physik*, 1954, **137**: S. 309~S. 312
- 26 J. B. Krieger, G. J. Iafrate. Quantum transport for Bloch electrons in a spatially homogeneous electric field[J]. *Phys. Rev. B*, 1987, **35**(18): 9644~9658