

文章编号:1001-9014(2011)06-0503-05

碲镉汞深能级载流子弛豫时间的皮秒泵浦-探测研究

马法君, 李志锋, 陈路, 陆卫

(中国科学院上海技术物理研究所 红外物理国家重点实验室, 上海 200083)

摘要:采用皮秒泵浦-探测方法研究了碲镉汞材料中非平衡载流子动力学过程,发现其差分透射强度在经过饱和之后出现一个负的极小值,归结为深能级的再吸收过程.采用速率方程模型,并引入两个深能级弛豫时间常数,很好地拟合了差分透射强度的延时曲线.两个深能级弛豫时间常数的存在意味着同时存在两种不同类型的深能级,揭示了碲镉汞材料中深能级特性的复杂性.此外还研究了弛豫时间随泵浦脉冲能量的变化关系.

关键词:碲镉汞;深能级;弛豫时间;泵浦-探测

中图分类号:O473 **文献标识码:**A

Picosecond pump-probe of carrier relaxation time in deep levels of HgCdTe

MA Fa-Jun, LI Zhi-Feng, CHEN Lu, LU Wei

(National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

Abstract: The non-equilibrium carrier dynamics in HgCdTe has been studied with picosecond pump-probe measurements. The delay-time dependent differential transmission shows a negative minimum after the absorption saturation maximum, which can be attributed to an additional absorption process because of the deep levels. A rate equation formalism has been employed to model the carrier dynamics. The experimental differential transmission spectrum has been fitted very well with the calculations when two deep level relaxation time constants are introduced, implying two types of the deep levels. The variation of the relaxation time with the pump intensity has also been studied.

Key words: HgCdTe; deep levels; relaxation time; pump-probe measurement

PACS: 72.20.Jv

引言

基于碲镉汞(HgCdTe)材料的半导体红外探测器件经过多年的发展已日臻成熟,并且成功地应用到航天航空及军事等各个领域.但目前对于碲镉汞材料中非平衡载流子的复合动力学过程的研究还不多见.类似于当前在飞秒太赫兹产生与探测中广泛使用的低温生长的GaAs薄膜^[1],对于碲镉汞材料的超快动力学过程的研究也将对高速碲镉汞光电子器件的发展具有重要意义.文中采用简并泵浦-探测技术在皮秒时间尺度上对碲镉汞材料进行了研究,发现其中深能级在复合过程中起到重要作用,并且存在两类弛豫时间不同的深能级,揭示了碲镉汞材料中深能级的复杂性.

1 实验方法

泵浦-探测实验装置示意图^[2]如图1所示.脉冲激光为波长1064 nm的Nd:YAG脉冲激光器.聚焦后的泵浦脉冲 $E(t)$ 和探测脉冲 $E(t-\tau)$ 在样品的表面重合,其中泵浦光斑直径大约160 μm ,探测光斑直径为50 μm 左右.通过调节延迟线(图1中的Variable τ)可以改变延迟时间 τ 的数值,即改变两束脉冲到达样品的相对时间.调节格兰棱镜和偏振片的角度等可以使泵浦光与探测光的强度比值大约为10:1.使用高灵敏度Coherent J3S-10硅光电二极管探测器对透射光信号进行探测,而参考光信号使用Coherent J4-09热电探测器.探测器的输出信号用高频数字存储示波器(Agilent Infiniium 54832B)采集,然后通过网线与延迟线位置信息一起输入计算

收稿日期:2010-07-16,修回日期:2010-08-30

Received date: 2010-07-16, revised date: 2010-08-30

作者简介:马法君(1980-),男,河南濮阳人,博士研究生,主要研究领域为激光与物质相互作用研究. E-mail: fajunma@foxmail.com.

机处理. 由于激光脉冲的重复频率为 10 Hz, 即在单一光束中光脉冲的时间间隔为 100 ms, 在此时间间隔, 所测碲镉汞样品由前一个脉冲激发所导致的状态变化都已恢复到平衡态, 对后续的脉冲激发过程不产生影响, 因此在实验过程中为提高信噪比, 对每一个延迟时刻进行多次采样的累积和平均, 采样数一般为 150 次. 首先在泵浦光被阻断的情况下测量探测光的透射强度 T_0 随延迟线的变化. 然后在有泵浦光的情况下, 再次测量探测光的透射强度随着延迟线变化的数据 T , 并计算得到归一化的差分透射强度 $(T - T_0)/T_0$. 实验在室温下进行.

碲镉汞薄膜材料用分子束外延技术生长在 GaAs 衬底上, Cd 组分 0.57, 为 Hg 空位 P 型材料, 室温载流子浓度 $1.09 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, 迁移率 $7.27 \times 10^1 \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$, 薄膜厚度为 11.7 μm . 该组分对应的室温禁带宽度约为 0.69 eV, 小于泵浦-探测的光子能量 (1064 nm, 1.17 eV).

2 实验结果与讨论

泵浦激光脉冲能量为 32.4 μJ 时的差分透射强度随探测脉冲延迟时间的变化关系见图 2. 由图 2 得出, 在延迟时间的零点附近透射强度变化达到最大, 标志着此时载流子对泵浦光的吸收达到饱和. 该饱和过程的持续时间与激光脉冲的时间宽度相对应, 约为 30 ps. 在饱和之后, 差分透射强度迅速下降, 在约 30 ps 处达到一个数值为负的极小值, 之后再增加并缓慢地恢复到接近于零. 该谱线表现出的基本特征与常规泵浦-探测实验所得到的差分透射谱^[3]有着显著的区别. 常规直接带隙半导体材料的差分透射谱中相对透过率的变化过程是在时间零点附近达到最大, 之后随延迟时间呈指数衰减到零, 其数值始终保持为正值. 而实验所观察到的差分透射

强度在达到最大值之后快速下降, 到达一个数值为负的极小值, 之后始终保持为负值并逐渐增加到接近于零. 这种现象非常类似于曾经在低温生长的 GaAs 薄膜中所观察到的现象^[4]. 在文献[4]中, 作者把这种相对透射强度出现负值, 之后再逐步恢复到零的现象归结为带间深能级的作用: 深能级首先以很快的速率俘获被泵浦光激发到导带的电子, 而后这些电子一方面向价带复合, 另一方面被探测光重新激发进入导带, 形成所谓诱导吸收过程, 造成探测光透射强度的减小, 甚至出现小于不加泵浦光时的情况, 即在差分透射谱上出现负值. 文献[4]提出了一组速率方程对实验结果进行了定量的分析, 较好地解释了实验现象, 并通过拟合提取了各过程的时间常数. 仿照该模型, 并结合本实验的皮秒泵浦特征, 采用以下方程组对实验结果进行分析.

导带电子浓度 N_c 随着时间变化速率方程为

$$\frac{dN_c}{dt} = \frac{I}{\hbar\omega}(\alpha_{\text{Fast}} + \alpha_{\text{Slow}} + \alpha_{\text{bb}}) - \frac{N_c}{\tau_1} \quad (1)$$

其中 I 为泵浦光强度, $\hbar\omega$ 为泵浦光子能量, α_{bb} 为带间跃迁的吸收系数, α_{Fast} 和 α_{Slow} 分别是已经弛豫到深能级上的电子被探测光再次激发, 分别从“快”的深能级和“慢”的深能级上跃迁到导带的吸收系数. 之所以引入两种深能级是因为在拟合过程中发现, 采用单一深能级模型不能很好地拟合实验曲线, 而引入“快”和“慢”两种深能级则能够使理论模型很好地符合实验结果. τ_1 是载流子从导带弛豫到深能级的时间常数.

两种深能级上电子浓度随着时间变化的速率方程分别为

$$\begin{aligned} \frac{dN_{\text{Fast}}}{dt} &= \frac{aN_c}{\tau_1} - \frac{N_{\text{Fast}}}{\tau_2} - \frac{I}{\hbar\omega}\alpha_{\text{Fast}} \\ \frac{dN_{\text{Slow}}}{dt} &= \frac{bN_c}{\tau_1} - \frac{N_{\text{Slow}}}{\tau_3} - \frac{I}{\hbar\omega}\alpha_{\text{Slow}} \end{aligned} \quad (2)$$

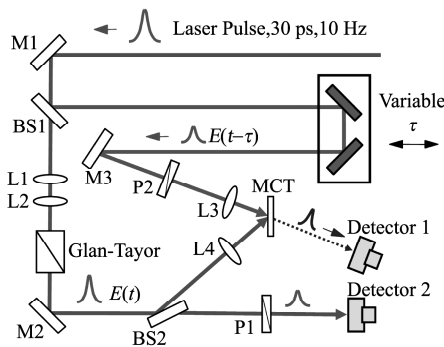


图 1 皮秒泵浦-探测的实验装置示意图

Fig. 1 Experimental setup of the picosecond pump-probe measurement

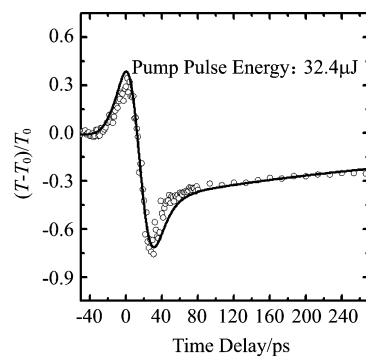


图 2 差分透射强度随延迟时间的变化关系

Fig. 2 Differential transmission versus time delay

其中 N_{Fast} 和 N_{Slow} 分别为快、慢深能级上的载流子浓度,而 τ_2 、 τ_3 分别为载流子从快、慢两种深能级弛豫到价带的时间常数.图 3 给出了上述模型的各跃迁和弛豫过程的示意图.对于探测光而言,由于其强度比泵浦光低一个数量级,因此认为其作用并不改变系统的基本状态,探测光的差分透射强度仅仅与导带和深能级上的光生载流子浓度成正比,其随时间的变化反映出光生载流子浓度随时间的变化关系.采用上述方程组对图 2 中的实验数据进行了拟合,其结果用实线表示.可以看到,理论计算与实验数据基本吻合.由此得到各弛豫过程的时间常数为: $\tau_1 = 0.70$ ps, $\tau_2 = 13.4$ ps, $\tau_3 = 902$ ps. 所得到的 τ_1 和 τ_2 的数值均小于实验中所采用的脉冲宽度,但在拟合过程中,有效数字位上的任何变化都能够引起理论-实验数据之间均方差的增加.因此尽管实验所采用的脉冲持续时间较长,仍然能够通过拟合得到较短时间过程的弛豫时间常数.

进一步通过改变泵浦光的脉冲能量进行实验,以研究弛豫时间随泵浦强度的变化.4 种激发强度下差分透射强度的实验数据和理论拟合曲线见图 4. 可以看到,在不同激发强度下的差分透射强度均表现出相类似的延时变化特征,并且理论曲线均能够与实验结果较好地吻合,说明所采用的速率方程组能够较好地解释实验在各种泵浦强度下所观察到的透射率变化的时间过程.拟合得到的各弛豫时间常数列于表 1 之中.

表 1 不同泵浦能量下各弛豫过程的时间常数
Table 1 Relaxation time constants under different pump pulse energies

pump pulse energy/ μJ	τ_1/ps	τ_2/ps	τ_3/ps
11.3	0.77	23.0	421
32.4	0.70	13.4	902
38.5	0.55	9.2	2997
49.7	0.38	4.5	2595

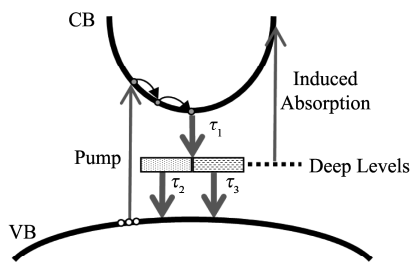


图 3 载流子受光激发跃迁并通过深能级弛豫过程示意图
Fig. 3 Schematic diagram of the carrier excitation and relaxation via deep levels

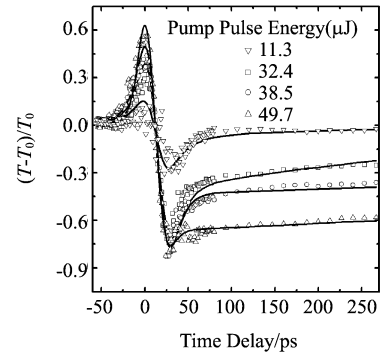


图 4 不同泵浦脉冲能量下差分透射强度随延迟时间的变化关系

Fig. 4 Differential transmission with different pump pulse energy

由表 1 得出, τ_1 和 τ_2 的数值与低温生长的 GaAs 薄膜中相对应过程的弛豫时间的数量级相同,分别在零点几皮秒、几皮秒到几十皮秒之间^[5],这一方面验证了实验数据的合理性,另一方面意味着碲镉汞材料也许是一种好的超快材料.此外,随着泵浦激光脉冲能量的增加 τ_1 和 τ_2 的过程时间变短.根据目前的文献报道,存在两种机制可能造成这种现象,即受激辐射机制和俄歇复合机制^[5-7].实验中是哪一种机制占主导作用,还需要进一步的详细研究.

τ_3 的变化规律与 τ_1 和 τ_2 均不相同,随着激光脉冲能量的增加, τ_3 不是减小而是增加的,并且在脉冲能量增加到较大时趋向于一个稳定的寿命.尝试这样理解这种现象:在激光脉冲能量较高的情况下,产生的非平衡载流子浓度也较高,而属于慢过程 τ_3 的深能级数量较少,很容易被填满.此时通过慢过程深能级进行复合的载流子,其复合速率不再由非平衡载流子总数决定,而是由慢过程深能级的数量决定.被全部占据的慢过程深能级形成了载流子复合过程中的一个“瓶颈”,致使非平衡载流子浓度虽高,但是单位时间内衰减的数量总是有限^[5],必须通过较长的时间才能完成全部复合.因此激发脉冲能量越高,非平衡载流子的浓度越高,所需要的弛豫过程时间 τ_3 就越长.这种情况发展到一定程度,使得激发的非平衡载流子浓度更高时,载流子的扩散机制可能会对测量结果形成主导的影响.由于泵浦和探测的光斑尺寸在数十微米的范围,集聚的大量受激非平衡载流子可能通过扩散离开所探测的区域,造成探测范围内的载流子浓度基本不变,导致当泵浦能量特别高时,所观测到的非平衡载流子的慢过程弛豫时间 τ_3 基本不变.这种定性的解释是否合理,是否能够从定量上理解 τ_3 随泵浦脉冲能量变化

的过程,将是下一步需要开展的研究内容.

3 结论

采用皮秒泵浦-探测方法对碲镉汞外延薄膜材料进行了研究,发现除了类似于一般的泵浦-探测实验在延迟时间零点附近探测光的差分透射强度出现饱和现象之外,经过饱和之后的探测光的差分透射强度迅速下降,达到一个数值为负的极小值,之后再增加并缓慢地恢复到接近于零.通过借鉴用于低温生长 GaAs 中的速率方程模型,并且引入两个深能级弛豫时间,对实验获得的差分透射强度随延迟时间的变化曲线进行了很好的拟合,提取到弛豫时间的数值,获得了弛豫时间随泵浦脉冲能量的变化关系,并且进行了定性的分析.由于碲镉汞材料自身的复杂性,例如可能同时存在汞空位、碲团聚和位错等多种缺陷,同时观测到的具有两种弛豫时间的深能级正是不同种类的缺陷的反映.同时采用光学手段的测量,研究的是对光激发敏感的缺陷,而把对光激发不敏感的缺陷的作用排除在外.因此,结果对于发展碲镉汞光电器件,特别是发展碲镉汞超快光电器件,以及对于深入理解碲镉汞材料中缺陷的行为

等将有一定的参考价值.

REFERENCES

- [1] Rihani S, Faulks R, Beere H, *et al.* Effect of defect saturation on terahertz emission and detection properties of low temperature GaAs photoconductive switches [J]. *Appl. Phys. Lett.* 2009, **95**(5):1106-1108.
- [2] Shah J. *Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures* [M]. Berlin ; New York : Springer Verlag, 1999:13.
- [3] Wintner E, Ippen E P. Nonlinear carrier dynamics in $Ga_x In_{1-x}As_y P_{1-y}$ compounds [J]. *Appl. Phys. Lett.* 1984, **44**(10):999-1001.
- [4] Othonos A. Probing ultrafast carrier and phonon dynamics in semiconductors [J]. *J. Appl. Phys.* 1998, **83**(4):1789-1830.
- [5] Sosnowski T S, Norris T B, Wang H H, *et al.* High-carrier-density electron dynamics in low-temperature-grown GaAs [J]. *Appl. Phys. Lett.* 1997, **70**(24):3245-3247.
- [6] Zhang Y C, Pancholi A, Stolerua V G. Size-dependent radiative lifetime in vertically stacked (In, Ga) As quantum dot structures [J]. *Appl. Phys. Lett.* 2007, **90**(18):3104-3106.
- [7] Lingk C, von Plessen G, Feldmann J. Dynamics of amplified spontaneous emission in InAs/GaAs quantum dots [J]. *Appl. Phys. Lett.* 2000, **76**(24):3507-3509.
- [1] Harris J G, Chiang Y M. Nonuniformity correction of infrared image sequences using the constant-statistics constraint [J]. *IEEE Trans. Image Proc.* 1999, **8**(8):1148-1151.
- [2] Scribner D A, Sarkady K A, Caulfield J T, *et al.* Adaptive retina-like preprocessing for imaging detector arrays [J]. *Proc. IEEE.* ,1993, **3**:1955-1960.
- [3] Scribner D A, Sarkady K A, Caulfield J T. Nonuniformity correction for staring IR focal plane arrays using scene-based techniques [J]. *Proc. SPIE.* 1990, **1308**:224-233.
- [4] Hardie R C, Hayat M M, Armstrong E E, *et al.* Scene-based nonuniformity correction using video sequences and registration [J]. *Applied Optics*, 2000, **39**(8):1241-1250.
- [5] Hardie R C, Baxley F, Brys B, *et al.* Scene-based nonuniformity correction with reduced ghosting using a gated LMS algorithm [J]. *Optics Express.* 2009, **17**(17):14918-14933.
- [6] Vera E, Meza P, Torres S. Total variation approach for adaptive nonuniformity correction in focal-plane arrays [J]. *Optics Letters.* 2011, **36**(2):172-174.
- [7] Shen H, Ai T, Li P. Destriping and inpainting of remote sensing images using maximum a-posteriori method [J]. *The International Archives of the Photogrammetry, Remote Sensing and Spatial Information Sciences (ISPRS)*, 2008, **XXXVII**(B1):63-70.
- [8] Yang Z, Li J, Menzel W P, *et al.* De-striping for MODIS data via wavelet shrinkage [J]. *Proc. SPIE.* 2003, **4895**:187-199.
- [9] Qian W X, Chen Q, Gu G H, *et al.* Correction method for stripe nonuniformity [J]. *Applied Optics*, 2010, **49**(10):1764-1773.
- [10] Irani M, Peleg S. Improving resolution by image registration [J]. *CVGIP: Graph Models Image Process.* 1991, **53**(3):231-239.
- [11] Hardie R C, Barnard K J, Bognar J G, *et al.* High resolution image reconstruction from a sequence of rotated and translated frames and its application to an infrared imaging system [J]. *Optical Engineering*, 1998, **37**:247-260.
- [12] Chen J S, Shao Y, Guo H D, *et al.* Destriping CMODIS data by power filtering [J]. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* ,2003, **41**(9):2119-2114.

(上接 502 页)

非制冷凝视红外焦平面阵列成像系统中产生的原因,基于亮度恒定假设,通过相邻两帧之间的配准,建立了条纹非均匀性校正的模型.通过模拟条纹非均匀性和实际红外图像序列仿真,验证了文中算法的校正效果.实验结果表明,文中算法能够在几帧内达到较好的收敛,有效提高了条纹非均匀性的校正效果,具有较强的实用价值.

REFERENCES