

# $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 晶体本征缺陷诱导的宽带超快光生载流子动力学\*

王露璇<sup>1)</sup> 刘奕彤<sup>1)</sup> 史方圆<sup>1)</sup> 祁纤雯<sup>1)</sup> 沈涵<sup>1)</sup> 宋瑛林<sup>2)</sup> 方宇<sup>1)†</sup>

1) (苏州科技大学物理科学与技术学院, 江苏省微纳热流技术与能源应用重点实验室, 苏州 215009)

2) (苏州大学物理科学与技术学院, 苏州 215006)

(2023年7月20日收到; 2023年8月16日收到修改稿)

利用超快瞬态吸收光谱, 针对氧化镓 ( $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 晶体中本征缺陷诱导的载流子俘获和复合等动力学进行研究. 实验发现, 由本征缺陷诱导的宽带吸收光谱具有很强的偏振依赖性, 特别是从不同探测偏振下的瞬态吸收光谱中可以提取出两个缺陷态吸收响应. 该缺陷诱导的吸收响应归因于从价带到本征缺陷 (镓空位) 不同电荷态的光学跃迁, 利用基于单缺陷的多能级载流子俘获模型拟合得到缺陷俘获空穴的速率远快于俘获电子, 且缺陷态的吸收截面相较于自由载流子吸收截面大至少一个数量级. 本文的研究结果不仅能明确本征缺陷与光生载流子动力学之间的关系, 而且为  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 在超快宽带光电子器件中的应用提供科学指导.

**关键词:**  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 瞬态吸收, 缺陷动力学, 载流子俘获**PACS:** 42.65.-k, 42.70.-a, 78.47.jb, 87.15.ht**DOI:** 10.7498/aps.72.20231173

## 1 引言

氧化镓 ( $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 是继 Si, SiC 及 GaN 后的第四代宽禁带半导体材料 (常温下禁带宽度  $E_g$  约为 4.8 eV)<sup>[1,2]</sup>, 具有更强的抗辐照和抗高温能力, 能与 CMOS 工艺兼容, 在高压大功率和紫外-可见光谱的集成光子器件领域具有巨大的潜力, 成为新一代半导体材料的代表<sup>[3-5]</sup>; 此外, 与 GaN 和 SiC 相比,  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 更容易生长出大面积、低成本和高质量的单晶, 可用作外延器件的基底. 然而,  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 存在多种点缺陷与陷阱态, 包括空位、间隙和充当施主或受主的杂质离子等<sup>[6-8]</sup>, 这些缺陷态引入的能级可作为有效的载流子俘获和发射中心并引起辐射或非辐射的载流子复合效应<sup>[9]</sup>, 对材料的光学和电学性能产生非常不利的影

响. 中的浅施主 (Si 和 Sn) 被广泛研究<sup>[6,10]</sup>, 深受体 (Mg 和 Fe) 以及空穴的自俘获过程也已有报道<sup>[11-13]</sup>.

通过多样的实验测量方法可对  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 中不同点缺陷进行研究与探索<sup>[14-16]</sup>, 包括光致阴极射线发光光谱、电子顺磁共振、热激发缺陷态光谱, 以及超快瞬态光谱等<sup>[17-20]</sup>. 更深入具体地了解这些缺陷态的成因和特征, 尤其是载流子输运及本征缺陷态相关的载流子俘获机制, 对  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基材料技术的发展和相关光电器件性能的提高至关重要. 基于吸收及光致发光的飞秒时间分辨泵浦探测技术, 是研究  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 晶体和纳米材料电子-声子散射、缺陷和表面相关的载流子复合效应、带间载流子输运以及其他非平衡动力学过程的有力工具<sup>[9,21-23]</sup>. 然而, 泵浦探测测量多使用单一或多个特定离散波长的探测光, 但  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 中同时存在的多种难以区分的电荷态和载流子复合过程, 使得其缺陷态动

\* 国家自然科学基金青年科学基金 (批准号: 11704273)、江苏省自然科学基金 (批准号: BK20221384)、“十四五”江苏省重点学科 (批准号: 2021135)、江苏省研究生科研与实践创新计划 (批准号: KYCX22\_3267) 和苏州科技大学大学生创新创业训练计划 (批准号: 202310332270X, 2022011002X) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yufang@usts.edu.cn

力学过程复杂而模糊不清. 利用白光超连续光谱将探测波长扩展到更宽的范围, 成为研究缺陷态动力学的有效途径, 超连续探测光谱能够给不同复合机制诱导的载流子弛豫过程提供更清晰的了解. 最近, 通过探测超连续谱的载流子动力学特性, 成功区分了 GaN 中碳缺陷不同电荷态对电子和空穴的俘获过程并确定相关载流子俘获速率 [24,25].

因此, 本文利用波长可调谐的超快瞬态吸收光谱研究  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  单晶中与本征镓空位 ( $V_{\text{Ga}}$ ) 相关的缺陷动力学特性. 在超快瞬态吸收光谱测量中, 自由载流子可以通过双光子激发, 同时缺陷态的电子被激发, 通过宽带超连续探测光束可以探测到载流子俘获后缺陷态的弛豫过程. 利用瞬态吸收不仅证明这些缺陷的不同电荷态的跃迁能级能够有效俘获光生载流子, 还发现由光脉冲激发缺陷态引起的额外吸收取决于探测光偏振相对于晶轴的方向.

## 2 样品与实验方法

本文使用的 (201) 晶向的  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  单晶采用导模法 (edge-defined film-fed growth, EFG) 技术制备而成 (Novel Crystal Technology, Inc.). 样品经过双面抛光技术, 厚度为 0.60 mm. 非故意掺杂 (unintentional doped, UID) 的  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  为 n 型半导体, 样品的自由电子密度  $n_0 < 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , 主要来源于硅 (Si), 剩余的主要杂质为受主杂质, 包括铁 (Fe)、镉 (Cr)、铝 (Al) 等, 浓度均约为  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . 实验使用 400 nm (3.1 eV) 的飞秒脉冲进行 Z 扫描和超快瞬态吸收光谱实验, 脉冲通过光参量放大器 (light conversion ORPHEUS, 190 fs, 6 kHz) 产生. 在瞬态吸收光谱实验中, 泵浦光聚焦在样品上

的光斑半径约为 0.4 mm, 将聚焦到蓝宝石晶体上产生的宽带超连续谱作为探测脉冲 (450—800 nm), 其光斑半径约为 100  $\mu\text{m}$ . 利用带有硅二极管阵列光电探测器 (Oriel MS127) 探测透射脉冲的强度  $I$ . 最后, 在每个延迟时间  $t_d$  内测量未经泵浦激发和经过泵浦激发下的差分光密度  $\Delta\text{OD} = \lg\left(\frac{I_{\text{unpumped}}}{I_{\text{pumped}}}\right)$ . 瞬态吸收光谱的实验光路和具体原理可参见文献 [26, 27]. 通过调整泵浦和探测脉冲相对于晶轴不同的角度偏振方向, 可以获得沿 [010] 和 [102] 晶向的瞬态光谱响应. 本文所有实验的测量均在室温下进行.

## 3 结果与讨论

图 1(a) 为 UID 和 Sn 掺杂  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  的线性透过光谱, 发现两个样品在带隙外的透过率均为 0 (源于本征吸收). 在 280 nm 之后, UID 样品保持较高的透过率 (几乎只存在样品表面反射), 而 Sn 掺杂样品观察到更低的光透射率, 证明 Sn 浅施主能级引入的自由电子会引起额外的载流子吸收. 理论和实验均表明, Sn 掺杂样品在 348 nm 附近存在一个弱透过率谷, 是来源于  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  导带底到较高导带电子的带间跃迁 [28]. 当激发光子能量  $E_{\text{photon}}$  满足  $E_g/2 < E_{\text{photon}} < E_g$  时, 可以发生双光子吸收 (two-photon absorption, TPA). 因此, 利用 400 nm (3.1 eV) 下的飞秒 Z 扫描测量技术来验证  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  晶体的 TPA 特性 (图 1(b)), 根据 Z 扫描理论拟合获得的 TPA 系数 ( $\beta$ ) 不随激发光强度变化, 证明了当泵浦光波长为 400 nm (图 1 中蓝色箭头) 时, 非平衡载流子只能通过 TPA 产生 [29,30].

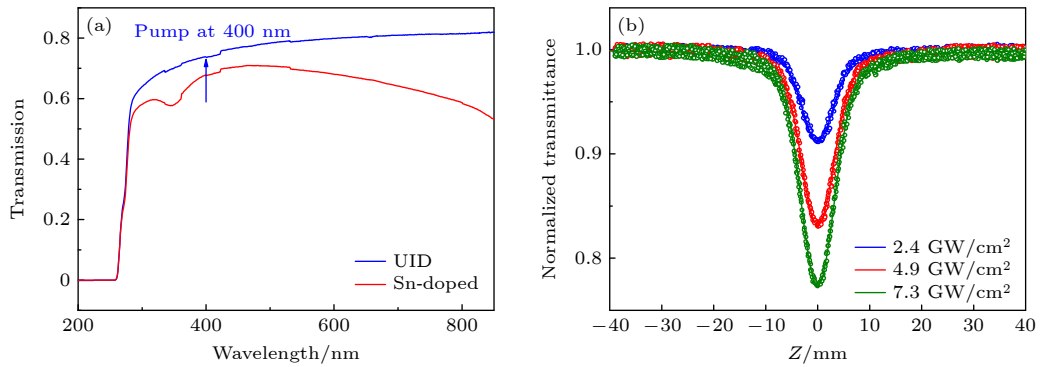


图 1 (a) UID 和 Sn 掺杂  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  的透射光谱, 箭头表示泵浦光波长; (b) 不同入射光强下  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  的开孔 Z 扫描曲线, 实线为理论拟合曲线

Fig. 1. (a) Optical transmission spectra of UID and Sn-doped  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ , where the arrow denotes the pump wavelength; (b) open-aperture Z-scan data of  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  at different incident light intensities, where the solid lines are theoretical fitting curves.

图 2 总结了泵浦光在  $8.8 \text{ GW/cm}^2$  光强下沿 [102] 晶向偏振时, 不同探测波长下 UID  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  的时间分辨瞬态吸收光谱和吸收衰减动力学曲线. 可以看出, 在 (201) 平面内探测光的偏振方向对吸收光谱 (幅值和形状) 以及动力学 (寿命) 皆具有显著的调制作用. 与探测光偏振在 (010) 面内的吸收响应 (随波长单调递增曲线) 完全不同<sup>[22]</sup>, 两种探测偏振的瞬态吸收光谱形状并没有表现出带内自由载流子吸收 (free carrier absorption, FCA) 特性. 这表明带隙内不同缺陷态在不同的探测偏振下会存在额外的光吸收. 另一方面, 吸收动力学不能用单指数衰减函数进行拟合, 在 300 ps 内沿 [010] 和 [102] 探测偏振方向  $\Delta\text{OD}$  随延迟时间分别快速衰减和增强后都保持不变.

利用 Z 扫描获得的 TPA 系数  $\beta = 1.95 \text{ cm/GW}$  ( $E//[102]$ ) 可以估算双光子激发产生的载流子浓度约为  $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . 因此, 800 nm 处由自由载流子吸收 (吸收截面  $\sigma_e \approx 1.2 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ ) 诱导的最大吸收响应 ( $\Delta\text{mOD}$ ,  $\Delta\text{mOD} = \Delta\text{OD} \times 10^{-3}$ ) 不应超过 0.5, 这远小于图 2(a) 和图 2(b) 中的吸收响应. 此外, 导带内的自由载流子吸收在 450—

800 nm 范围内几乎表现出各向同性<sup>[28]</sup>. 据此, 飞秒瞬态吸收响应主要源于缺陷态相关的吸收, 且其响应在初始激发后 ( $< 2 \text{ ps}$ ) 即可立刻观测到. 考虑到  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  单晶中的其他杂质 (Fe, Cr 和 Al) 浓度较低、能级位置较深以及低光吸收特性, 其影响可以从瞬态吸收响应中排除<sup>[31–33]</sup>. 此外, 图 2(c) 和图 2(d) 中瞬态吸收动力学曲线中的快过程时间常数 ( $\sim 100 \text{ ps}$ ) 比载流子-声子相互作用和空穴自俘获的时间要慢得多, 也不会对载流子动力学产生影响<sup>[17,34]</sup>. 由此可见, 瞬态吸收响应源于电子从价带到本征缺陷态之间的跃迁.

为了更好地解释和量化本征缺陷吸收, 进一步证明缺陷态的偏振依赖关系, 图 3(a) 和图 3(b) 给出了  $t_d = 2 \text{ ps}$  处  $\Delta\text{mOD}$  随光子能量的变化曲线. 不同探测偏振下的缺陷吸收光谱可以通过两个高斯函数拟合, 这表明可能存在多个缺陷或存在多个电荷态的单个缺陷. 探测光的偏振沿着 [010] 和 [102] 轴时分别观测到位于  $\sim 1.84 \text{ eV}$  和  $\sim 2.03 \text{ eV}$  的吸收峰, 且在两种探测偏振方向上还均观测到  $2.40 \text{ eV}$  附近的吸收峰. 将沿 [102] 轴方向的  $\Delta\text{mOD}$  与沿 [010] 轴方向的  $\Delta\text{mOD}$  相减 ( $[102]-[010]$ ) 来

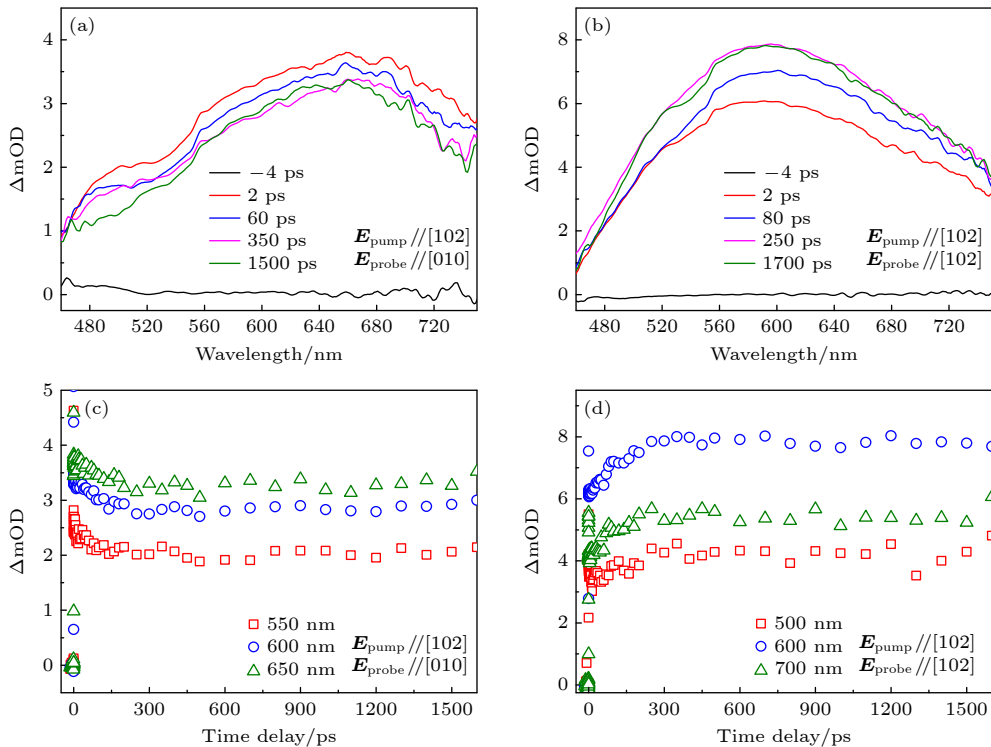


图 2 在不同的延迟时间下, 沿 (a) [010] 和 (b) [102] 晶轴探测下 UID  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  晶体的瞬态吸收光谱; 沿 (c) [010] 和 (d) [102] 轴探测下提取的不同波长吸收衰减动力学. 泵浦脉冲固定为沿 [102] 轴偏振

Fig. 2. Transient absorption spectra of the UID  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  crystal probed at different delay times for different probe polarizations with respect to the (a) [010] and (b) [102] crystal axes. Extracted decay dynamics of absorption under different probe wavelengths for probe polarization along the (c) [010] and (d) [102] axes. The pump pulse is fixed to be polarized along the [102] axis.

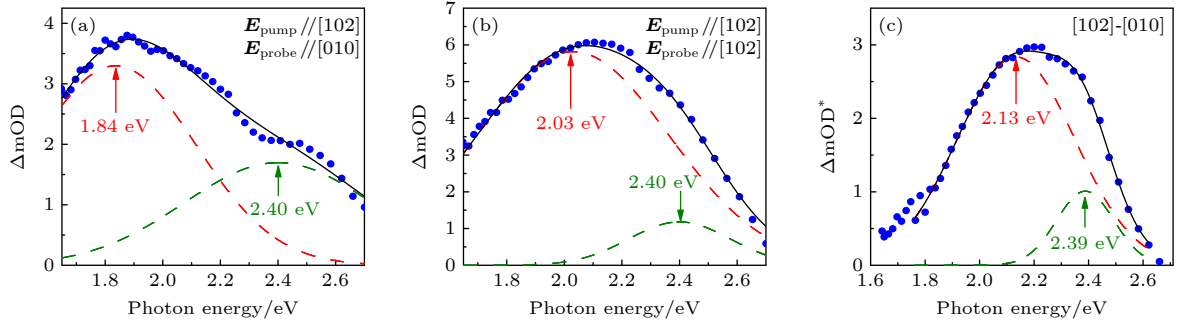


图3 在  $t_d = 2$  ps 处沿 (a) [010] 和 (b) [102] 晶轴探测偏振下的缺陷吸收光谱 (数据点); (c) 两个探测偏振方向的差分瞬态吸收  $\Delta mOD^*$ . 所有的缺陷吸收光谱都可以用两个高斯函数 (虚线) 进行拟合

Fig. 3. Defect absorption spectra (dots) as a function of probe photon energy for polarization along the (a) [010] and (b) [102] crystal axes at  $t_d = 2$  ps; (c) the difference transients  $\Delta mOD^*$  between two probe polarization directions. All the defect absorption spectra can be fitted using two Gaussian functions (dashed lines).

分析缺陷吸收贡献的各向异性, 并把这种修正的差分吸收定义为  $\Delta mOD^*$ , 在  $t_d = 2$  ps 处  $\Delta mOD^*$  随探测光子能量的变化如图 3(c) 所示. 修正后的缺陷吸收光谱也可以通过两个高斯吸收函数进行拟合, 一个以 2.13 eV (590 nm) 为中心, 另一个以 2.39 eV (521 nm) 为中心, 与图 3(b) 的峰值几乎一致. 值得注意的是, 图 3(b) 中在  $\sim 2.10$  eV 处没有吸收峰, 而图 3(c) 中 1.84 eV 处的吸收峰消失. 根据这些现象可以得出以下结论: 以  $\sim 1.84$  eV 为中心的吸收是各向同性的; 以  $\sim 2.39$  eV 为中心的吸收略微依赖于偏振; 以 2.13 eV 为中心的吸收表现出完全的偏振依赖特性, 且只能在沿 [102] 轴的探测光偏振下观测到.

第一性原理计算发现,  $V_{Ga}$  相关的缺陷形成能很低 [35–37], 所以它们极有可能存在于 n 型  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  中.  $V_{Ga}$  及其复合物具有多重电荷态 (至少 4 个) [19,35–37]. 其中 Ga(I) 双空位-间隙复合物 ( $2V_{Ga}^1\text{-Ga}_i^c$ ) 可以从显微观测中直接确定 [38], 该复合物在富氧条件下的形成能是所有本征缺陷中最低的 [37]. 对于复合物 ( $2V_{Ga}^1\text{-Ga}_i^c$ ), 距离导带底 (conduction band minimum, CBM) 最近的电荷态跃迁能级  $\epsilon(-3/-2)$  在 CBM 下方  $\sim 1.6$  eV, 表明在光激发前, 该缺陷在 n 型  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  中主要电荷态为  $-3$ . 由于跃迁能级  $\epsilon(-2/-1)$  和  $\epsilon(-1/0)$  分别在 CBM 下方 2.2–2.8 eV 和 3.0–3.2 eV 处 [19,35,37], 因此实验中使用的 3.1 eV 泵浦脉冲可以引起电子从缺陷态  $2V_{Ga}^1\text{-Ga}_i^c$  到导带的光学跃迁 (即  $-3$  到 0 缺陷电荷态跃迁). 由实验和计算获得的完全晶格弛豫能量 0.1–0.5 eV [14,39,40], 可估算出探测光诱导的  $-1$  到  $-2$  和 0 到  $-1$  电荷态的光学跃迁 (电子从价带到  $2V_{Ga}^1\text{-Ga}_i^c$  缺陷态的跃迁) 能量分别约为 2.5 eV 和

2.1 eV, 这与实验观测到的吸收峰 (2.39 和 2.13 eV) 非常接近. 此外, 计算表明从  $-1$  到  $-2$  电荷态的光学跃迁几乎是偏振无关的, 但是从 0 到  $-1$  电荷态的跃迁表现出很强的各向异性 (光偏振沿  $c$  轴时强度最大) [22], 这些特性与观测到的两个缺陷吸收峰表现出的各向异性特性相一致. 同时, 以 1.84 eV 为中心的各向同性缺陷吸收可归因于另一个次要  $V_{Ga}$  复合物 ( $2V_{Ga}^1\text{-Ga}_i^b$ ) 从  $-2$  到  $-1$  电荷态的光学跃迁 (电子从缺陷态到导带的跃迁), 其跃迁能级  $\epsilon(-2/-1)$  位于 CBM 下方  $\sim 1.4$  eV [19]. 除了 Ga(I) 双空位-间隙复合物, 另一些  $V_{Ga}$  复合物 (如  $V_{Ga}\text{-H}$  和  $V_{Ga}\text{-V}_O$ ) 也可以解释缺陷诱导的瞬态吸收和载流子复合 [35,41]. 虽然这里的研究不能完全区分不同的本征缺陷, 但利用宽带超连续谱的高灵敏特性, 可以更准确地探究吸收光谱和缺陷动力学, 并为未来更可控的研究验证提供重要思路 [22].

根据上述分析, 图 4 描述了泵浦诱导的电荷态跃迁和双光子激发下缺陷辅助的载流子弛豫动力学模型.

相应的各种过程可以根据所提出的模型用速率方程来描述:

$$\begin{aligned} \frac{d\Delta n}{dt} &= \frac{\beta I_{\text{ex}}^2}{2\hbar\omega} - \sum_i C_n^i N_d^i n \quad (i = 0, -1), \\ \frac{d\Delta p}{dt} &= \frac{\beta I_{\text{ex}}^2}{2\hbar\omega} - \sum_i C_p^i N_d^i \Delta p \quad (i = -1, -2), \\ \frac{dN_d^i}{dt} &= C_n^{i+1} N_d^{i+1} n + C_p^{i+1} N_d^{i+1} \Delta p \\ &\quad - (C_n^i N_d^i n + C_p^i N_d^i \Delta p) \quad (i = 0, -1), \end{aligned} \quad (1)$$

其中,  $I_{\text{ex}}$  是泵浦脉冲的强度,  $\Delta n(\Delta p)$  是导带 (价带) 中的光激发电子 (空穴) 浓度,  $n = n_0 + \Delta n$  是总电子浓度,  $C_n^i (C_p^i)$  是  $V_{Ga}$  缺陷在  $i$  电荷态

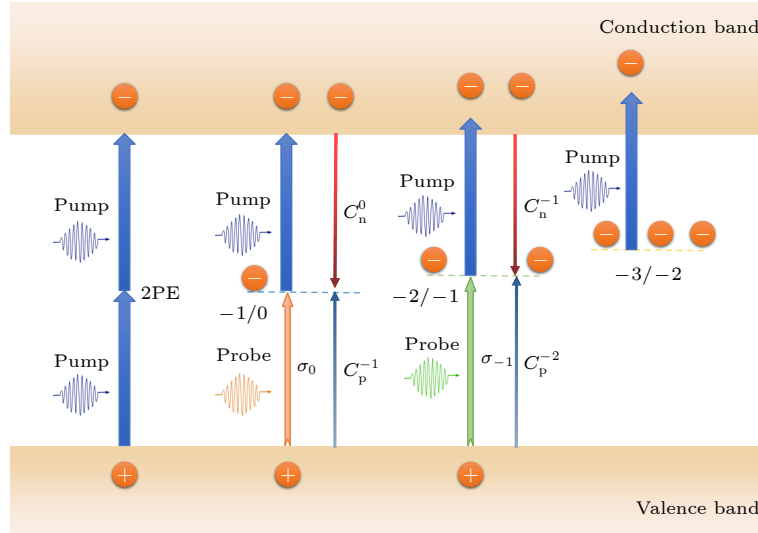


图 4 双光子激发 (2PE) 载流子俘获和本征缺陷吸收图,  $V_{\text{Ga}}$  相关缺陷的多电荷态 ( $2V_{\text{Ga}}^1\text{-Ga}_i^c$ ) 可以被泵浦脉冲激发并允许载流子俘获和光学跃迁 (探测脉冲所经历的瞬态吸收)

Fig. 4. Diagram of two-photon excited (2PE) carrier capture and the intrinsic defect absorption, the multiple charge states of the  $V_{\text{Ga}}$ -related defects ( $2V_{\text{Ga}}^1\text{-Ga}_i^c$  is for consideration) can be excited by pump pulses and allow carrier trapping (black arrows) and optical transitions (transient absorption experienced by the probe pulses).

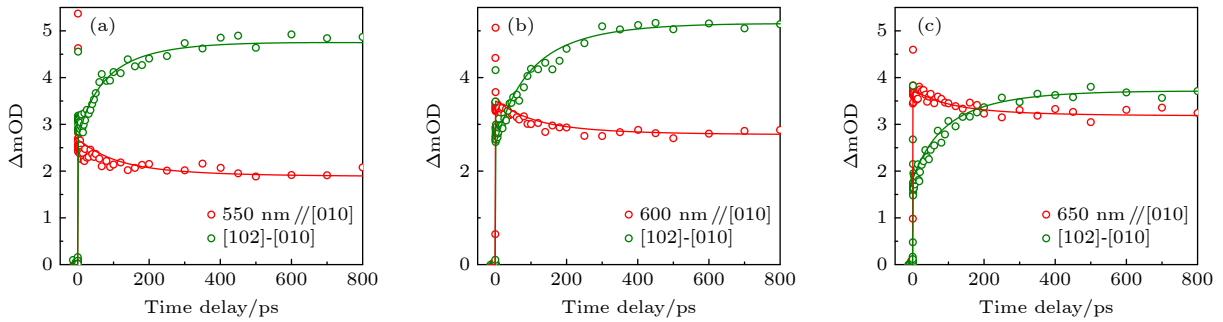


图 5 (a)—(c) 泵浦光沿 [102] 轴偏振时, 测量和拟合得到的不同探测偏振和波长下 UID  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  的吸收动力学

Fig. 5. (a)—(c) Measured and computed absorption kinetics in UID  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  for different probe polarizations and wavelengths when pumped along the [102] axis.

(密度  $N_d^i$ ) 中的电子 (空穴) 俘获系数. 在该模型中, 为了简化分析, 我们将泵浦激发后  $N_d^{-3}$  和  $N_d^{+1}$  设置为 0. 同时, 探测波长和时间延迟依赖的  $\Delta\text{OD}$  可以描述为

$$\Delta\text{OD}(\lambda, t_d) = \int_0^d [\sigma_{-1}(\lambda)N_d^{-1}(z, t_d) + \sigma_0(\lambda)N_d^0(z, t_d)] dz, \quad (2)$$

其中  $\sigma_0(\lambda)$  和  $\sigma_{-1}(\lambda)$  是缺陷 (考虑  $2V_{\text{Ga}}^1\text{-Ga}_i^c$ ) 在缺陷处于 0 和  $-1$  电荷态时的吸收截面. 通过数值求解这组速率方程, 可以确定  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  中载流子俘获的瞬态吸收动力学. 利用构建的模型提取的所有参数总结在表 1 中. 图 5(a)—(c) 给出 UID  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  的瞬态吸收测量数据和利用表 1 中的参数计算拟合的结果, 利用该模型计算的结果与所有探

测偏振和波长下的瞬态吸收都非常吻合.

利用提出模型得到的  $2V_{\text{Ga}}^1\text{-Ga}_i^c$  复合物浓度  $[V_{\text{Ga}}]$  与  $(\bar{2}01)$  UID  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  中深能级光谱测量的缺陷浓度非常接近 [38]. 缺陷相关的吸收截面比自由载流子吸收截面至少大一个数量级 [28], 通过

表 1 提取的瞬态吸收动力学模型参数  
Table 1. Extracted parameters to model the transient absorption kinetics.

参数	数值
$N_d/\text{cm}^3$	$(1.7 \pm 0.2) \times 10^{16}$
$C_p^{-2}/(\text{cm}^3 \cdot \text{s})$	$(1.6 \pm 0.3) \times 10^{-6}$
$C_p^{-1}/(\text{cm}^3 \cdot \text{s})$	$(1.3 \pm 0.2) \times 10^{-6}$
$\sigma_{-1 \text{  max}} // [010]/\text{cm}^2$	$(1.4 \pm 0.4) \times 10^{-17}$
$\sigma_{-1 \text{  max}} // [102]/\text{cm}^2$	$(2.3 \pm 0.5) \times 10^{-17}$
$\sigma_0 \text{  max} // [102]/\text{cm}^2$	$(2.2 \pm 0.6) \times 10^{-17}$

调节泵浦脉冲或探测脉冲的偏振方向, 还可以进一步调制超宽带载流子吸收, 极大地促进材料在光限幅和光伏领域的应用. 俘获系数  $C_p^{-1}$  和  $C_p^{-2}$  之间的俘获竞争导致  $[V_{\text{Ga}}^{-1}]$  在 300 ps 内的吸收动力学略有下降, 而  $V_{\text{Ga}}^{-1}$  对空穴的快速俘获速率导致  $[V_{\text{Ga}}^0]$  迅速增大. 空穴俘获系数比电子俘获系数大 3 个数量级<sup>[22]</sup>, 这是由于带负电荷的  $V_{\text{Ga}}$  和空穴之间的库仑吸引作用 (如  $V_{\text{Ga}}^{-2}$  和  $V_{\text{Ga}}^{-1}$ ),  $V_{\text{Ga}}$  复合物所有电荷态对空穴的俘获系数甚至远大于 GaN 中的有效俘获中心 (C 和 Fe)<sup>[25,42–44]</sup>. 因此, 考虑到在近红外波段更强的 FCA 以及更低的缺陷态吸收, 可以充分利用快速俘获效应在通信波段实现全光开关的应用.

## 4 结 论

综上所述, 本文通过飞秒宽带探测吸收光谱研究了 n 型  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  中缺陷诱导的超快光生载流子俘获动力学. 实验结果表明偏振相关的吸收特性主要归因于本征 Ga 空位复合物从价带到不同电荷态的电子跃迁. 提出的基于单缺陷的多能级俘获载流子模型可以很好地解释不同探测波长和偏振下的瞬态吸收响应, 表明超快瞬态光谱可以成为探索超宽禁带半导体中缺陷态动力学的有效手段. 此外, 实验还发现缺陷对空穴相较于电子具有极快的俘获速率 ( $\sim 10^{-6}$  cm<sup>3</sup>/s), 并且本征缺陷诱导的吸收响应 ( $\sigma \approx 2 \times 10^{-17}$  cm<sup>2</sup>) 远大于自由载流子吸收.  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  中本征缺陷对载流子俘获寿命和宽带吸收动力学的独特调制将对光伏器件、宽带光限幅器和超快全光调制器的设计和应用具有重要意义.

## 参考文献

- [1] Pearton S J, Yang J C, Cary P H, Ren F, Kim J, Tadjer M J, Mastro M A 2018 *Appl. Phys. Rev.* **5** 011301
- [2] Higashiwaki M, Kaplar R, Pernot J, Zhao H P 2021 *Appl. Phys. Lett.* **118** 200401
- [3] Higashiwaki M, Sasaki K, Kuramata A, Masui T, Yamakoshi S 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 013504
- [4] Chen X H, Ren F F, Gu S L, Ye 2019 *Photonics Res.* **7** 381
- [5] Guo D Y, Guo Q, Chen Z, Wu Z, Li P, Tang W H 2019 *Mater. Today Phys.* **11** 100157
- [6] Tadjer M J, Lyons J L, Nepal N, Freitas Jr J A, Koehler A D, Foster G M 2019 *ECS J. Solid State Sci. Technol.* **8** Q3187
- [7] McCluskey M D 2020 *J. Appl. Phys.* **127** 101101
- [8] Zhang J, Shi J, Qi D C, Chen L, Zhang K H L 2020 *APL Mater.* **8** 020906
- [9] Koksall Q, Tanen N, Jena D, Xing H G, Rana F 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 252102
- [10] Varley J B, Weber J R, Janotti A, Van de Walle C G 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 142106
- [11] Kananen B E, Halliburton L E, Scherrer E M, et al. 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 072102
- [12] Feng Z, Bhuiyan A F M, Kalarickal N K, Rajan S, Zhao H 2020 *Appl. Phys. Lett.* **117** 222106
- [13] Sun Y F, Li Z G, Fang Y, Wu X Z, Zhou W F, Jia Z T, Yang J Y, Song Y L 2022 *Appl. Phys. Lett.* **120** 032101
- [14] Zhang Z, Farzana E, Arehart A R, Ringel S A 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 052105
- [15] Islam M M, Rana D, Hernandez A, Haseman M, Selim F A 2019 *J. Appl. Phys.* **125** 055701
- [16] Islam M M, Adhikari N, Hernandez A, et al. 2020 *J. Appl. Phys.* **127** 145701
- [17] Yamaoka S, Furukawa Y, Nakayama M 2017 *Phys. Rev. B* **95** 094304
- [18] Gao H, Muralidharan S, Pronin N, et al. 2018 *Appl. Phys. Lett.* **112** 242102
- [19] Skachkov W R L, Lambrecht H J, von Bardeleben U 2019 *J. Appl. Phys.* **125** 185701
- [20] Montes J, Kopas C, Chen H, et al. 2020 *J. Appl. Phys.* **128** 205701
- [21] Othonos A, Zervos M, Christofides C 2010 *J. Appl. Phys.* **108** 124302
- [22] Singh A, Koksall O, Tanen N, McCandless J, Jena D, Xing H G, Peelaers H, Rana F 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 023154
- [23] Cho J B, Jung G, Kim K, Kim J, Hong S K, Song J H, Jang J I 2021 *J. Phys. Chem. C* **125** 1432
- [24] Fang Y, Wu X Z, Chen Y Q, Yang J Y, Song Y L 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 168701 (in Chinese) [方宇, 吴幸智, 陈永强, 杨俊义, 宋瑛林 2020 *物理学报* **69** 168701]
- [25] Fang Y, Wu X Z, Yang J Y, Wang J P, Wu Q Y, Song Y L 2021 *Appl. Phys. Lett.* **118** 112105
- [26] Fang Y, Yang J Y, Yang Y, Wu X Z, Xiao Z G, Zhou F, Song Y L 2015 *Journal of Phys. D: Appl. Phys.* **49** 045105
- [27] Wang J P, Wu X Z, Yang J Y, Chen Y Q, Wu Q Y, Song Y L, Fang Y 2022 *Acta Opt. Sin.* **42** 2219001 (in Chinese) [王建苹, 吴幸智, 杨俊义, 陈永强, 吴泉英, 宋瑛林, 方宇 2022 *光学学报* **42** 2219001]
- [28] Singh A, Koksall O, Tanen N, McCandless J, Jena D, Xing H L, Peelaers H, Rana F 2020 *Appl. Phys. Lett.* **117** 072103
- [29] Chen H, Fu H, Huang X, Montes J A, Yang T H, Baranowski I, Zhao Y 2018 *Opt. Express* **26** 3938
- [30] Sun Y F, Fang Y, Li Z G, Yang J Y, Zhou W F, Liu K, Song Y L 2021 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54** 495105
- [31] Kuramata A, Koshi K, Watanabe S, Yamaoka Y, Masui T, Yamakoshi S 2016 *J. Appl. Phys.* **55** 1202A2
- [32] Luchechko A, Vasylytsiv V, Zhydachevskyy Y, et al. 2020 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53** 354001
- [33] Galazka Z, Ganschow S, Fiedler A, et al. 2018 *J. Cryst. Growth* **486** 82
- [34] Peelaers H, Van de Walle C G 2019 *Phys. Rev. B* **100** 081202
- [35] Varley J B, Peelaers H, Janotti A, Van de Walle C G 2011 *J. Phys. Condens. Matter* **23** 334212
- [36] Deák P, Ho Q D, Seemann F, Aradi B, Lorke M, Frauenheim T 2017 *Phys. Rev. B* **95** 075208
- [37] Ingebrigtsen M E, Kuznetsov A Y, Svensson B G, Alfieri G, Mihaila A, Badstübner U, Perron A, Vines L, Varley J B 2019 *APL Mater.* **7** 022510
- [38] Johnson J M, Chen Z, Varley J B, et al. 2019 *Phys. Rev. X* **9** 041027
- [39] Nie Y Y, Jiao S J, Li S F, et al. 2022 *J. Alloys Compd.* **900** 163431

- [40] Farzana E, Ahmadi E, Speck J S, Arehart A R, Ringel S A 2018 *J. Appl. Phys.* **123** 161410
- [41] Zimmermann C, Rønning V, Frodason Y K, Bobal V, Vines L, Varley J B 2020 *Phys. Rev. Mater.* **4** 074605
- [42] Fang Y, Wu X Z, Yang J Y, Xiao Z G, Yang Y, Zhou F, Song Y L 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 051901
- [43] Ščajev P, Jarašiūnas K, Leach J 2020 *J. Appl. Phys.* **127** 245705
- [44] Reshchikov M A, Vorobiov M, Demchenko D O, et al. 2018 *Phys. Rev. B* **98** 125207

# Broadband ultrafast photogenerated carrier dynamics induced by intrinsic defects in $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>\*

Wang Lu-Xuan<sup>1)</sup> Liu Yi-Tong<sup>1)</sup> Shi Fang-Yuan<sup>1)</sup> Qi Xian-Wen<sup>1)</sup>  
Shen Han<sup>1)</sup> Song Ying-Lin<sup>2)</sup> Fang Yu<sup>1)†</sup>

1) (*Jiangsu Key Laboratory of Micro and Nano Heat Fluid Flow Technology and Energy Application, School of Physical Science and Technology, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China*)

2) (*School of Physical Science and Technology, Soochow University, Suzhou 215006, China*)

(Received 20 July 2023; revised manuscript received 16 August 2023)

## Abstract

The ultra-wide bandgap semiconductor gallium oxide  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> with enhanced resistance to the irradiation and temperature is favorable for high-power and high-temperature optoelectronic devices.  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> also exhibits great potential applications in the field of integrated photonics because of its compatibility with the CMOS technique. However, a variety of intrinsic and extrinsic defects and trap states coexist in  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, including vacancies, interstitials, and impurity atoms. The defect-related carrier dynamics in  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> not only adversely affect the optical and electrical properties, but also directly limit the performance of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> based devices. Therefore, a comprehensive understanding of the carrier transportation and relaxation dynamics induced by intrinsic defects is very important. Supercontinuum-probe spectroscopy can provide a fruitful information about the carrier relaxation processes in different recombination mechanisms, and thus becomes an effective way to study the defect dynamics. In this work, we study the dynamics of carrier trapping and recombination induced by intrinsic defects in pristine  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> crystal by using wavelength-tunable ultrafast transient absorption spectroscopy. The broadband absorption spectra induced by the intrinsic defects are strongly dependent on the polarization of pump pulse and probe pulse. Particularly, two absorption peaks induced by the two defect states can be extracted from the transient absorption spectra by subtracting the absorption transients under two probe polarizations. The observed defect-induced absorption features are attributed to the optical transitions from the valence band to the different charge states of the intrinsic defects (such as gallium vacancy). The data are well explained by a proposed carrier capture model based on multi-level energies. Moreover, the hole capture rate is found to be much greater than that of the electron, and the absorption cross-section of the defect state is at least 10 times larger than that of free carrier. Our findings not only clarify the relationship between intrinsic defects and photogenerated carrier dynamics, but also show the importance in the application of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> crystals in ultrafast and broadband photonics.

**Keywords:**  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, transient absorption, defect dynamics, carrier trapping

**PACS:** 42.65.-k, 42.70.-a, 78.47.jb, 87.15.ht

**DOI:** 10.7498/aps.72.20231173

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11704273), the Natural Science Foundation of Jiangsu Province, China (Grant No. BK20221384), the Jiangsu Key Disciplines of the Fourteenth Five-Year Plan, China (Grant No. 2021135), the Postgraduate Research & Practice Innovation Program of Jiangsu Province, China (Grant No. KYCX22\_3267), and the Undergraduate Training Programs for Innovation and Entrepreneurship of Suzhou University of Science and Technology, China (Grant Nos. 202310332270X, 2022011002X).

† Corresponding author. E-mail: yufang@usts.edu.cn



## $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>晶体本征缺陷诱导的宽带超快光生载流子动力学

王露璇 刘奕彤 史方圆 祁纤雯 沈涵 宋瑛林 方宇

### Broadband ultrafast photogenerated carrier dynamics induced by intrinsic defects in $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Wang Lu-Xuan Liu Yi-Tong Shi Fang-Yuan Qi Xian-Wen Shen Han Song Ying-Lin Fang Yu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 214202 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20231173

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20231173>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

N掺杂对 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜日盲紫外探测器性能的影响

Effect of N-doping on performance of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film solar-blind ultraviolet detector

物理学报. 2021, 70(17): 178503 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210434>

薄膜厚度对射频磁控溅射 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜光电性能的影响

Effect of film thickness on photoelectric properties of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films prepared by radio frequency magnetron sputtering

物理学报. 2022, 71(4): 048501 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211744>

$\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>纳米材料的尺寸调控与光致发光特性

Size Regulation and Photoluminescence Properties of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Nanomaterials

物理学报. 2020, 69(10): 108102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200158>

引入籽晶层的物理溅射生长Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>外延薄膜特性研究

Characteristics of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> epitaxial films on seed layer grown by magnetron sputtering

物理学报. 2020, 69(22): 228103 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200810>

外电场下含有缔合缺陷的ZnO/ $\beta$ -Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>界面电学性能

Electrical properties of ZnO/ $\beta$ -Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> interfaces featuring aggregation defect under external electric fields

物理学报. 2022, 71(2): 026801 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20210635>

基于新CH<sub>2</sub>O势能面的反应量子波包动力学

Wave packet quantum dynamics of reaction based on new CH<sub>2</sub>O surface

物理学报. 2020, 69(8): 083401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200132>