

面向太赫兹光电导应用的 Fe 掺杂 InGaAs 薄膜 固源分子束外延生长与物性研究*

殷钰坤¹⁾²⁾ 杨文龙¹⁾ 侯曦宇¹⁾²⁾ 师海彦¹⁾²⁾李东海¹⁾²⁾ 张梓桐^{3)†} 潘东^{1)2)‡}

1) (中国科学院半导体研究所, 半导体芯片物理与技术全国重点实验室, 北京 100083)

2) (中国科学院大学材料科学与光电技术学院, 北京 100049)

3) (华中光电技术研究所-武汉光电国家研究中心, 武汉 430223)

(2026 年 1 月 5 日收到; 2026 年 1 月 21 日收到修改稿)

针对 1550 nm 波段激光激励的太赫兹光电导天线对高性能光电材料的需求, 本文利用固源分子束外延低温生长了 InGaAs:Fe 薄膜, 研究了 Fe 掺杂浓度对材料微观结构与载流子输运性质的调控规律. 高分辨 X 射线衍射与透射电子显微镜表征结果表明, 所得 InGaAs:Fe 薄膜具有高晶体质量, Fe 元素在 InGaAs 层中实现了均匀掺杂且未见明显相分离或团簇结构. 霍尔效应测试进一步揭示了 Fe 掺杂浓度与材料电学性能之间的演变关系. 结果显示, 在 Fe 掺杂浓度为 $6.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 时, 样品展现出最优的综合电学性能, 载流子浓度可低至 $2.05 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, 电阻率可提升至 $381.82 \text{ } \Omega \cdot \text{cm}$, 载流子迁移率可达到 $796.89 \text{ cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$. 此外, 利用飞秒瞬态泵浦-探测技术测得样品的载流子寿命仅为 0.65 ps. 本研究为研制高信噪比、超快响应的太赫兹光电导天线提供了材料支撑.

关键词: Fe 掺杂 InGaAs, 薄膜, 分子束外延, 微观结构, 输运性质

DOI: 10.7498/aps.75.20260014

CSTR: 32037.14.aps.75.20260014

1 引言

近年来, 太赫兹时域光谱系统 (terahertz time-domain spectroscopy, THz-TDS) 逐渐从传统台式实验设备向着手持式、便携化的现场检测工具发展^[1,2]. 作为该系统的核心组件^[3,4], 太赫兹光电导天线 (terahertz photoconductive antenna, THz-PCA) 通常由半导体衬底、光电导层和金属电极 3 部分组成. 早期 THz-PCA 主要采用 800 nm 自由空间激光激发的 GaAs 基材料研制^[5-7], 这使得

系统高度依赖结构复杂且维护昂贵的钛蓝宝石 (Ti:Sapphire) 激光器. 为实现 THz-TDS 的小型化与商用化, 研发适配 1550 nm 通信波段光纤激光器驱动的 THz-PCA 已成为当前该领域的重要研究方向^[8,9]. 针对应用于 1550 nm 波段的 InGaAs 材料体系, 受窄带隙特性的影响, 其电学参数要求与传统 GaAs 材料显著不同. 根据光电导天线的工作原理, 理想的光电导层材料需要同时满足 3 项关键电学性能: 高电阻率 (10^2 — $10^3 \text{ } \Omega \cdot \text{cm}$ 量级) 以抑制暗电流噪声并提高器件在高偏置电场下的抗击穿能力、高电子迁移率 ($500 \text{ cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$ 以上) 以增

* 国家自然科学基金 (批准号: U25D8011, 12374459)、中国科学院战略重点研究项目 (批准号: XDB0460000) 和中国科学院青年创新促进会 (批准号: 2017156, Y2021043) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhang-zt18@tsinghua.org.cn

‡ 通信作者. E-mail: pandong@semi.ac.cn

强瞬态光电流, 以及皮秒至亚皮秒量级的超短电子寿命以实现超快响应特性^[10]. 针对 1550 nm 波段激光激发的 THz-PCA 应用需求, 目前已有多种光电导层材料被研究和报道, 包括低温 InGaAs(LT-InGaAs)^[11,12]、过渡金属掺杂 InGaAs^[13-15]、无掺杂或铍掺杂 InGaAs/InAlAs 超晶格^[16-19]等. 其中, 在半绝缘 InP:Fe 衬底上外延生长的 Fe 掺杂 InGaAs (InGaAs:Fe) 薄膜, 凭借其优异的综合性能, 被认为是研制高性能 THz-PCA 的绝佳材料^[14].

针对 InGaAs:Fe 薄膜的研究表明, 生长工艺的选择会显著影响材料的电学性能. 金属有机物气相外延 (metal organic vapor phase epitaxy, MOVPE) 在生长 InGaAs:Fe 薄膜时存在明显的掺杂瓶颈: 当 Fe 掺杂浓度超过 $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 时, 材料会发生从 N 型导电向 P 型导电的转变^[20]. 这制约了材料电学性能的进一步优化, 导致利用 MOVPE 生长的 InGaAs:Fe 薄膜材料方块电阻仅有 $6.2 \times 10^6 \Omega/\text{sq}$, 基于此材料制成的 THz-PCA 发射器仅能实现 2.5 THz 带宽与 50 dB 最大动态范围的太赫兹脉冲辐射^[13]. 相比之下, 分子束外延 (molecular beam epitaxy, MBE) 技术凭借其可低温生长的优势, 可实现 Fe 掺杂浓度的显著提升. 2017 年, 德国弗劳恩霍夫·海因里希·赫兹研究所利用气源分子束外延 (gas source-molecular beam epitaxy, GS-MBE) 低温生长的 InGaAs:Fe (LT-InGaAs:Fe) 薄膜在 Fe 掺杂浓度高达 $5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 时仍能保持 N 型导电. 基于该材料制备的 THz-PCA 发射器可实现 6 THz 带宽及 95 dB 峰值动态范围的太赫兹脉冲辐射^[14]. 与 MOVPE 和 GS-MBE 相比, 固源分子束外延 (solid source-molecular beam epitaxy, SS-MBE) 在生长上述材料时有诸多的优势. 首先, SS-MBE 在超高真空环境 ($\leq 10^{-10}$ Torr) 下运行, 其背景杂质浓度远低于 MOVPE 和 GS-MBE, 且采用高纯固体单质元素或化合物作为原材料, 能够有效降低非故意掺杂水平, 确保外延层极高的化学纯度. 其次, SS-MBE 可精确控制源炉温度, 能够实现极其稳定且可重复的束流通量控制, 配合机械快门的快速切换能力能够获得原子级锐利的薄膜分界面. 此外, 相较于使用剧毒气体 (AsH_3 , PH_3) 的 MOVPE 和 GS-MBE, SS-MBE 使用高纯固体源材料, 这不仅极大地降低了实验室的安全风险和生物毒性威胁, 也大幅简化了废气处理工艺, 更符合绿色科研及生产的要求. 然而, 目前国内外利用

SS-MBE 开展面向 THz-PCA 应用的 LT-InGaAs:Fe 薄膜研究仍十分匮乏.

针对上述问题, 采用 SS-MBE 开展了一系列不同 Fe 掺杂浓度 InGaAs:Fe 薄膜的低温外延生长. 采用二次离子质谱仪 (secondary ion mass spectrometry, SIMS) 测量了样品 Fe 掺杂浓度的深度空间分布. 利用高分辨率 X 射线衍射仪 (high-resolution X-ray diffractometer, HRXRD) 与透射电子显微镜 (transmission electron microscope, TEM) 研究了薄膜的晶体质量、微观形貌与组分分布随 Fe 掺杂浓度的演变规律. 通过霍尔效应测试得到了不同 Fe 掺杂浓度样品的室温电学性能随 Fe 掺杂浓度的变化规律. 利用飞秒瞬态泵浦-探测测量技术得到了样品的飞秒瞬态反射谱, 进而获得了样品的载流子寿命. 结果表明, 当 Fe 掺杂浓度为 $6.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 时, 样品具有优异的综合电学性能, 载流子浓度、电阻率、载流子迁移率以及载流子寿命分别为 $2.05 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, $381.82 \Omega\cdot\text{cm}$, $796.89 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 0.65 ps. 该高质量薄膜材料的成功制备, 为后续研制高性能 THz-PCA 器件提供了材料支撑.

2 实验过程

2.1 样品生长

本文中所有样品均采用 VG-V80H SS-MBE 系统在商用 Fe 掺杂半绝缘 InP(100) 衬底上外延生长. 该系统配备了高纯固态源 (In, Ga, Al, As_4) 及 Fe 掺杂源. 在生长流程开始前, 衬底在依次经丙酮、无水乙醇和去离子水清洗后, 置于预室中加热至 200 °C 并保持 2 h, 完成衬底除气. 随后, 利用束流计精确校准 In, Ga, Al 及 As 源的束流等效压强 (beam equivalent pressure, BEP), 以确定各源所需要的生长温度. 由于 Fe 掺杂源所用的 BEP 低于束流计的检测下限, 无法直接获得 Fe 源的 BEP, 所以本文通过精确控制 Fe 源温度以实现不同样品的掺杂水平调控. 样品开始生长前, 加热衬底至 600 °C 并保持 20 min 以去除表面氧化层; 期间, 当衬底升温至 300 °C 时开启 As 源使得衬底处于 As_4 气氛保护下防止其热分解^[21]. 脱氧完成后, 将衬底降温至 380 °C. 接着, 外延生长 0.7—1 μm 厚的 InAlAs 缓冲层 (生长时长 1 h), 该阶段 In, Al, As 源的 BEP 分别设定为 2.48×10^{-7} , 0.62×10^{-7} ,

6.53×10^{-6} mbar, 对应的 V/III 比为 21.06. 随后, 继续生长 1—1.4 μm 厚的 LT-InGaAs:Fe 薄膜 (时长 1.5 h), 该阶段 In, Ga, As 源的 BEP 分别设定为 2.48×10^{-7} , 1.76×10^{-7} , 6.53×10^{-6} mbar, 对应的 V/III 比为 15.40. 实验中通过将 Fe 源温度分别设置为 1090, 1098, 1108, 1112, 1114, 1120 $^{\circ}\text{C}$, 制备了一系列具有不同 Fe 掺杂浓度的 LT-InGaAs:Fe 薄膜样品.

2.2 样品表征

为实现 Fe 掺杂浓度的定量分析, 利用 SIMS 对 Fe 源温度为 1108 $^{\circ}\text{C}$ 的样品进行深度剖面分析. 该 SIMS 测试结果一方面揭示典型样品中 Fe 元素的深度空间分布, 还将作为定量标定的基准, 实现对全系列样品 Fe 掺杂浓度的估算.

为表征上述系列样品的晶体质量, 采用 HRXRD (Bruker D8 Discover) 获得了各样品的衍射图谱以及相应的摇摆曲线. 为进一步观察各样品的微观结构与元素空间分布, 使用聚焦离子束系统 (focused ion beam, FIB, FEI Helios G4 CX) 制备截面薄片, 并通过 TEM (JEOL JEM F200, 工作电压 200 kV) 获得样品的高分辨图像. 同时, 结合高角环形暗场像-扫描透射电子显微镜 (high-angle annular dark field-scanning transmission electron microscope, HAADF-STEM) 工作模式下的能量色散谱 (energy dispersive X-ray spectroscopy, EDS) 分析, 通过面扫描分析获得截面薄片的元素空间分布信息.

为表征上述系列样品的电学性质, 我们利用综合物性测量系统 (physical property measurement system, PPMS, Quantum Design PPMS-9T) 通过范德堡法在室温条件下对样品的载流子浓度与电阻率进行测试, 并由此计算得到载流子迁移率. 在此基础上, 通过飞秒瞬态泵浦-探测测量技术获得样品在 1550 nm 波长激光激发下的飞秒瞬态反射谱, 并利用单指数函数拟合提取了样品的载流子寿命.

3 实验结果与讨论

3.1 Fe 掺杂浓度表征

本文利用 SIMS 对样品中 Fe 掺杂浓度的深度分布进行了表征. 图 1 为 Fe 源温度为 1108 $^{\circ}\text{C}$ 时

样品的 SIMS 深度分布曲线. 我们以 InGaAs:Fe 外延层与名义不掺杂的 InAlAs 缓冲层之间 Fe 掺杂浓度骤降作为界面界定标志. 由图 1 可见, 从外延层表面至 1.18 μm 深度范围内, Fe 掺杂浓度稳定维持在 $6.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 左右, 呈现出近乎平坦的分布. 这不仅证实生长过程中 Fe 源通量的高度稳定性, 也反映了 Fe 原子在 InGaAs 晶格中良好的掺杂均匀性. 值得注意的是, 在名义未掺杂的 InAlAs 缓冲层中也观察到 Fe 元素信号, 在文献 [14,20] 中也观察到此现象, 其可能源于生长过程中的 Fe 原子热扩散.

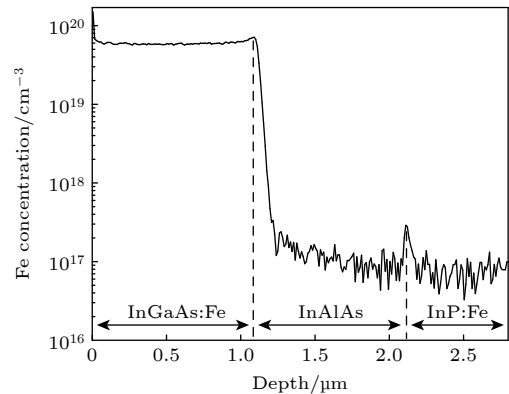


图 1 Fe 源温度为 1108 $^{\circ}\text{C}$ 时样品的 SIMS 深度分布曲线
Fig. 1. SIMS depth profile of the sample grown at Fe source temperature of 1108 $^{\circ}\text{C}$.

已有研究表明, 在利用 MBE 生长 Fe 掺杂 GaN 薄膜过程中, Fe 掺杂浓度与源炉温度倒数呈指数关系. 在半对数坐标系中, 拟合直线的斜率由 Fe 的升华激活能 E_a 确定 [22]. 这一变化规律在数学形式上与描述反应速率的阿伦尼乌斯方程 [23] 形式相同, 对应表达式为

$$C = Ae^{-E_a/(k_B T)},$$

其中, C 为掺杂浓度, A 为指前系数, E_a 为升华激活能, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为绝对温度. 利用 MBE 开展材料外延时, 源炉 BEP 与温度之间的关系同样满足阿伦尼乌斯方程. 根据该方程, 我们拟合了 Fe 源温度为 1220—1250 $^{\circ}\text{C}$ 时的实测 BEP-温度数据, 从而计算得到 Fe 源的升华激活能 E_a 为 3.81 eV, 该值与物理数据手册 [24] 中通过蒸气压-温度关系拟合得出的升华激活能 (≈ 3.82 eV) 相吻合. 随后, 通过代入 Fe 源温度为 1108 $^{\circ}\text{C}$ 样品的实测掺杂浓度, 即可得到 Fe 掺杂浓度随源温度演变的阿伦尼乌斯方程表达式为 $C = e^{77.57} \cdot e^{-3.18/(k_B T)}$,

其中, C 为掺杂浓度, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为绝对温度. 基于该表达式, 我们估算了本研究中所有 Fe 源温度对应的掺杂浓度, 估算结果如表 1 所列. 由表 1 可见, Fe 源温度从 1090 °C 升高到 1114 °C, Fe 的掺杂浓度由 $3.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 提高到 $6.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

表 1 基于阿伦尼乌斯方程获得的各 Fe 源温度下 Fe 掺杂浓度估算值

Table 1. Estimated Fe doping concentrations of the InGaAs:Fe samples grown at different Fe source temperatures based on the Arrhenius equation.

Fe 温度/°C	绝对温度/K	估算掺杂浓度/ cm^{-3}
1090	1363.15	$\sim 3.9 \times 10^{19}$
1098	1371.15	$\sim 4.7 \times 10^{19}$
1108(基准)	1381.15	6.0×10^{19}
1112	1385.15	$\sim 6.6 \times 10^{19}$
1114	1387.15	$\sim 6.9 \times 10^{19}$

3.2 XRD 表征

图 2 展示了 Fe 源温度分别为 1090, 1098, 1108, 1112, 1114 °C 时样品的 X 射线衍射 (X-ray diffraction, XRD) 图谱. 由图 2 可见, 所有样品的 XRD 图谱基线平稳, 仅 InP:Fe 衬底与 InGaAs:Fe 外延层的特征衍射峰清晰可辨, 未观察到杂质相的衍射

峰, 这初步说明所制备的 InGaAs:Fe 薄膜样品具有良好的相纯度和单晶结构. InAlAs 缓冲层的特征衍射峰在图谱中未能显现, 推测原因在于其层厚较薄, 导致衍射峰信号强度低于仪器检测下限或被邻近强峰掩盖.

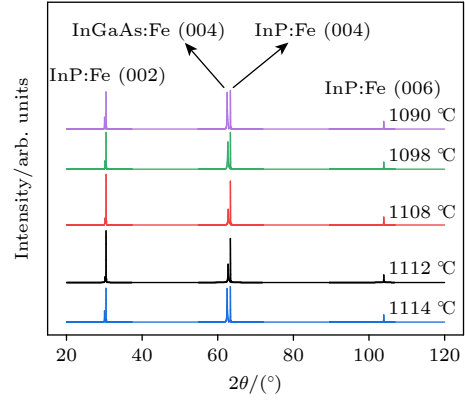


图 2 不同 Fe 源温度下 InGaAs:Fe 样品的 XRD 图谱
Fig. 2. XRD patterns of InGaAs:Fe samples grown at different Fe source temperatures.

图 3 展示了该系列样品在 InP(004) 衍射峰附近的 HRXRD 图谱及对应摇摆曲线. 如图 3(a) 所示, 随着 Fe 掺杂浓度升高, InGaAs:Fe 薄膜衍射峰相对于 InP:Fe 衬底衍射峰发生了偏移, 呈现出晶格常数先收缩后扩张的演变趋势. 与此同时,

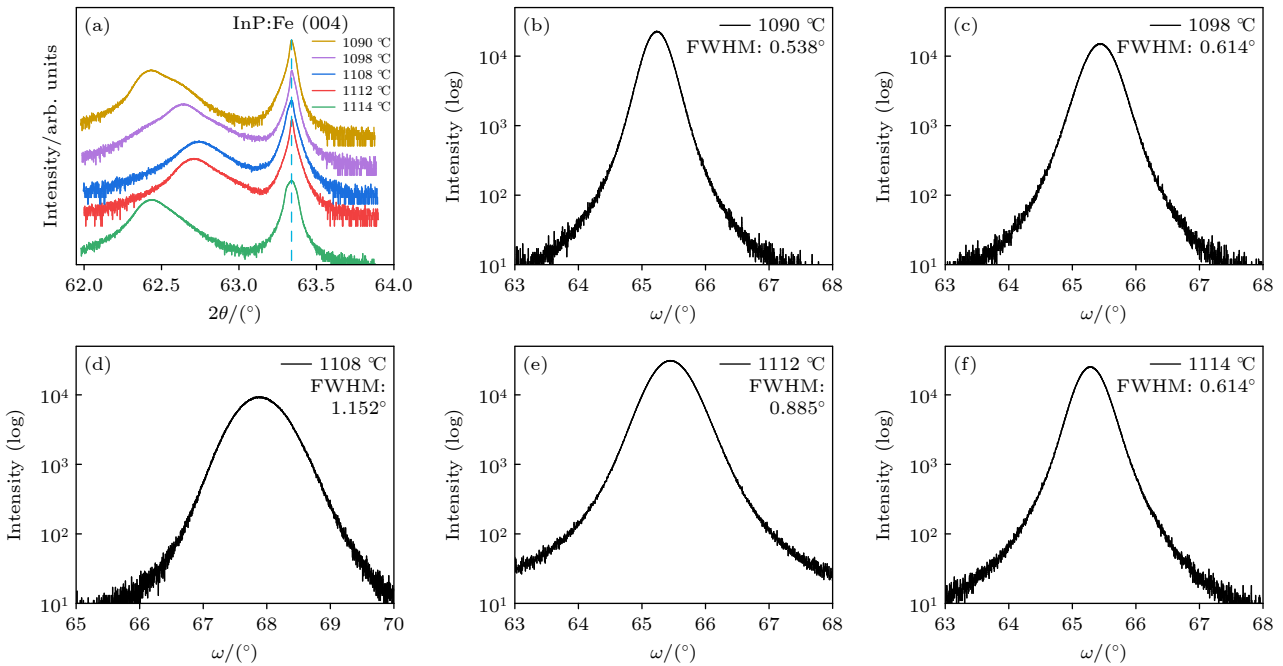


图 3 (a) 不同 Fe 源温度下 InGaAs:Fe 样品的 HRXRD 图谱; (b)–(f) Fe 源温度为 1090, 1098, 1108, 1112, 1114 °C 时, InGaAs:Fe 薄膜衍射峰的摇摆曲线

Fig. 3. (a) HRXRD patterns of InGaAs:Fe samples grown at different Fe source temperatures; (b)–(f) rocking curves of the diffraction peaks for InGaAs:Fe thin films grown at Fe source temperatures of 1090, 1098, 1108, 1112, and 1114 °C, respectively.

由图 3(b)–(f) 的摇摆曲线可见, 表征晶体质量的半峰宽 (full width at half maximum, FWHM) 呈现出先增大后减小的变化规律. 已有研究表明, MBE 低温生长环境会抑制 Fe 原子占据晶格替代位, 使其在晶格中以替代位和间隙位并存的形式存在^[14], 而两种占位方式会通过不同的晶格畸变机制影响晶格常数. 在低浓度掺杂阶段, Fe 原子主要以替代位形式存在, 取代 InGaAs 中的阳离子 (In 或 Ga) 点位. 由于 Fe 原子半径 (1.17 Å) 小于 In (1.44 Å) 和 Ga (1.26 Å) 原子, 这种替代掺杂会导致晶格收缩, 从而导致晶格常数的减小. 随着 Fe 掺杂浓度升高, Fe 原子逐渐占据晶格间隙位置. 间隙原子的挤压效应会导致晶格产生膨胀应变, 使得晶格常数回升. 这一机制可合理解释实验中观测到的晶格常数先收缩后扩张的非单调变化趋势. 同理, 我们推测 FWHM 先增后减的非单调演变也与 Fe 原子占位密切相关. 在低掺杂浓度下, Fe 主要通过替代位形式存在, 由于原子半径差异, 这种替代引起了局部晶格的无序与微观应变, 导致了 FWHM 的增加. 而当掺杂浓度继续升高, 间隙位 Fe 原子逐渐变多, 间隙占据引起的晶格膨胀应力与替代占据引起的收缩应力部分抵消. 这种微观应力的部分抵消减小了晶格的整体畸变程度, 从而在实验上观测到 FWHM 减小. 为进一步厘清 Fe 原子在 LT-InGaAs:Fe 薄膜晶格中的占位状态, 我们后续将利用 X 射线吸收精细结构谱 (X-ray absorption fine

structure, XAFS) 对样品进行深入表征.

3.3 TEM 与 EDS 表征

图 4 展示了 Fe 源温度为 1108 °C 时样品的 TEM 及 EDS 图像. 图 4(a) 为样品横截面的低倍 TEM 图像. 可以看出, InP:Fe 衬底层、InAlAs 缓冲层、InGaAs:Fe 外延层之间具有清晰的界面. 图 4(b), (c) 分别为 InGaAs:Fe 外延层区域的高分辨 TEM 图像及其对应的快速傅里叶变换 (fast fourier transform, FFT) 图样. 从高分辨 TEM 图可以看出, InGaAs:Fe 外延层中原子周期排列, 清晰的晶格条纹贯穿整个观察区域. 对应的 FFT 图样呈现出典型的单晶衍射斑点, 无明显的拉长或弥散现象, 直观证明了 InGaAs:Fe 外延层为高质量的纯闪锌矿结构. 图 4(d) 为 InAlAs 缓冲层与 InGaAs:Fe 外延层界面区域的 HAADF-STEM 图像. 图 4(e)–(i) 分别为该区域 Ga, As, Al, In 及 Fe 元素的 EDS 面扫描图像. 其中, Ga 与 Al 元素的分布特征进一步佐证 InAlAs 缓冲层与 InGaAs:Fe 外延层之间存在明确的分界. 图 4(i) 中 Fe 元素的 EDS 面扫描图像说明 Fe 原子已成功且均匀地掺入 InGaAs 外延层中. 在探测精度范围内, 未见明显的 Fe 原子偏析或团簇现象. 此外, InAlAs 缓冲层中也出现了 Fe 元素信号, 推测可能与外延生长过程中 Fe 原子扩散有关. 在此基础上, 对 Fe 源温度分别为 1090, 1098, 1112, 1114 °C 的样品也进

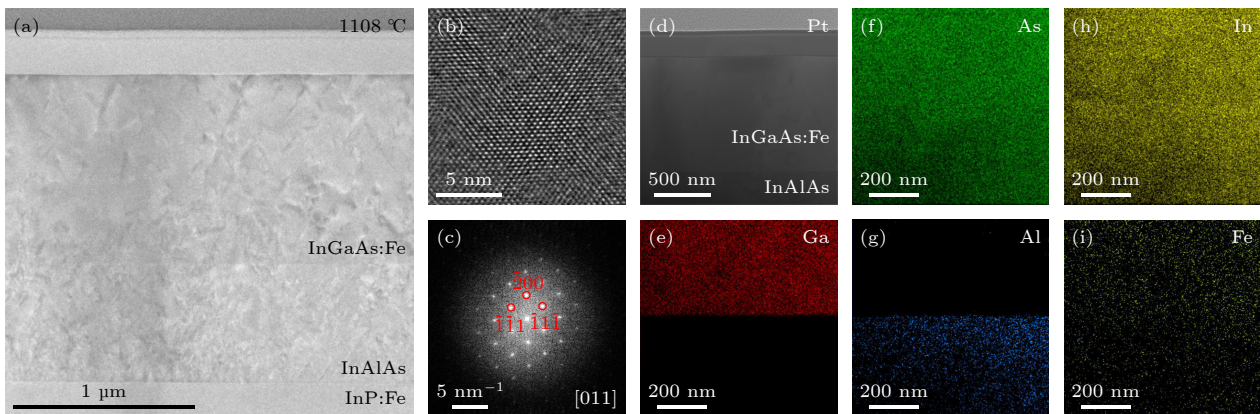


图 4 Fe 源温度为 1108 °C 时, 样品横截面的 TEM 图像及 EDS 面扫描图像 (a) 样品横截面低倍 TEM 图像; (b) InGaAs:Fe 层典型的高分辨 TEM 图像; (c) 图 (b) 对应的 FFT 图样; (d) 样品横截面 HAADF-STEM 图像; (e)–(i) Ga 元素、As 元素、Al 元素、In 元素及 Fe 元素对应的伪彩色 EDS 面扫描图像

Fig. 4. Cross-sectional TEM image and EDS data of the InGaAs:Fe sample grown at an Fe source temperature of 1108 °C; (a) Low-magnification cross-sectional TEM image of the sample; (b) typical high-resolution TEM image of the InGaAs:Fe layer; (c) FFT pattern corresponding to (b); (d) cross-sectional HAADF-STEM image of the sample; (e)–(i) false color EDS maps of the Ga, As, Al, In, and Fe elements, respectively.

行了相同的 TEM 及 EDS 分析 (详见补充材料 (online)). 结果表明, 在上述 Fe 源温度下, 所有样品均表现为高质量的单晶, 与 HRXRD 结果一致. 特别是, 当 Fe 源温度由 1090 °C 升高至 1114 °C 时, 样品中均未观察到明显的 Fe 原子偏析或团簇现象.

为了进一步研究 Fe 掺杂浓度对 InGaAs:Fe 外延层微观结构的影响, 我们在保持其他生长参数不变的条件下, 将 Fe 源温度提升至 1120 °C. 在该条件下生长的样品对应的 TEM 及 EDS 面扫描图像如图 5 所示. 与较低 Fe 源温度掺杂样品不同, 从图 5(a)–(c) 的 TEM 图像可以清晰地观察到, InGaAs:Fe 外延层中存在明显的相分离现象. 尺度不一的纳米级团簇随机分布在外延层中, 这些团簇的存在严重破坏了原本连续规整的晶格周期性排列. 图 5(f) 为图 5(c) 对应的 FFT 图样, 可以发现两套衍射斑点, 证实了 InGaAs:Fe 外延层中存在两种不同的晶格结构. 从样品的低倍 HAADF-STEM 图像 (图 5(d)) 及 Fe 元素 EDS 面扫描图像 (图 5(e)) 可发现, 这些团簇结构呈现出显著的 Fe 元素富集特征. 为进一步验证团簇的组分信息, 对图 5(d) 中的局部区域进行了高分辨表征. 图 5(g)–(i) 为样品局部放大的 HAADF-STEM 图像及 Fe 元素 EDS 面扫描图像. 结果再次证实 InGaAs:

Fe 外延层中的团簇结构由 Fe 元素组成. 上述实验结果表明, 当 Fe 源温度为 1120 °C 时, 过饱和的 Fe 原子在生长过程中会聚集形成直径不等的团簇结构, 导致 InGaAs:Fe 外延层由均匀掺杂的单相结构转变为含有析出相的多相结构. 因此, 在本文所述的生长参数下, 为了获得无 Fe 原子偏析的单晶样品, Fe 源温度需要低于 1120 °C.

3.4 霍尔效应测试

表 2 汇总了室温下 Fe 源温度分别为 1090, 1098, 1108, 1112, 1114 °C 时样品的霍尔效应测试结果. 如表 2 所示, 样品导电类型与 Fe 源温度紧密相关: Fe 源温度低于 1112 °C 时, 材料表现为

表 2 不同 Fe 源温度下 InGaAs:Fe 样品室温霍尔测试结果

Table 2. Room-temperature Hall measurement results of InGaAs:Fe samples grown at different Fe source temperatures.

Fe源温度 / °C	导电类型	载流子浓度 / cm^{-3}	电阻率 / $(\Omega \cdot \text{cm})$	迁移率 / $(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$
1090	N	8.58×10^{15}	40.18	18.10
1098	N	6.79×10^{13}	294.89	311.55
1108	N	2.05×10^{13}	381.82	796.89
1112	N	2.38×10^{13}	345.1	759.79
1114	P	3.07×10^{14}	31.28	650.59

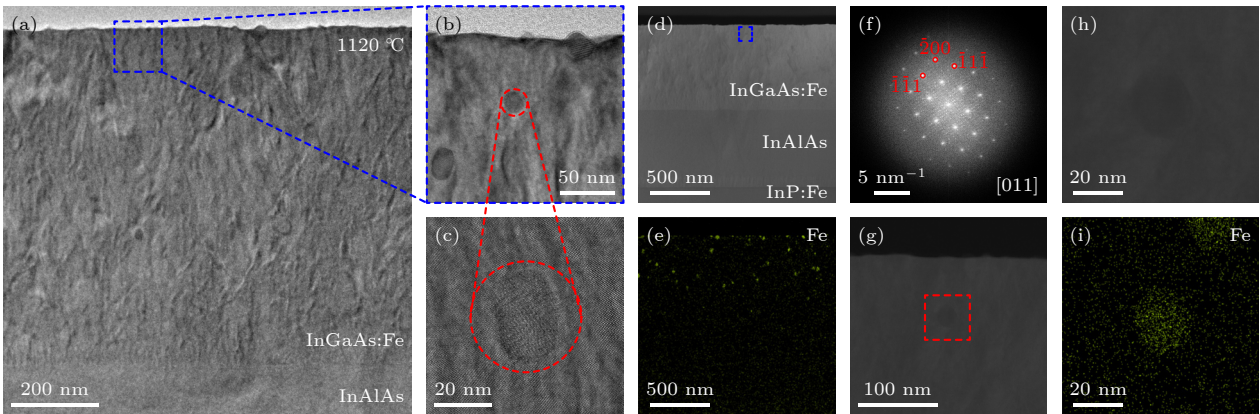


图 5 Fe 源温度为 1120 °C 时, 样品横截面 TEM 图像及 EDS 面扫描图像 (a) 样品横截面低倍 TEM 图像; (b) 图 (a) 中蓝色区域放大图像; (c) 图 (b) 中红色区域放大图像; (d) 样品横截面 HAADF-STEM 图像; (e) 图 (d) 对应的 Fe 元素 EDS 面扫描图像; (f) 图 (c) 对应的 FFT 图像; (g) 图 (d) 中蓝色区域放大图像; (h) 图 (g) 中红色区域放大图像; (i) 图 (h) 对应的 Fe 元素 EDS 面扫描图像

Fig. 5. Cross-sectional TEM image and Fe element EDS data of the InGaAs:Fe sample grown at an Fe source temperature of 1120 °C: (a) Low-magnification cross-sectional TEM image of the sample; (b) magnified TEM image of the sample recorded from the blue region in panel (a); (c) magnified TEM image of the sample recorded from the red region in panel (b); (d) cross-sectional HAADF-STEM image of the sample; (e) false color EDS mapping of the Fe corresponding to panel (d); (f) FFT pattern corresponding to panel (c); (g) magnified HAADF-STEM image of the sample recorded from the blue region in panel (d); (h) magnified HAADF-STEM image of the sample recorded from the red region in panel (g); (i) false color EDS mapping of the Fe corresponding to panel (h).

N型导电;而当Fe源温度升高至1114℃时,材料会从N型导电转变为P型导电.为了满足THz-PCA器件对材料N型导电的要求,Fe源温度在本文所述的生长参数下,需要低于1114℃.

鉴于THz-PCA应用对材料N型导电特性的要求,本文着重分析N型导电样品的电学性能随Fe源温度的变化规律.图6展示了N型导电样品电子浓度、电阻率和电子迁移率随Fe源温度的变化曲线.结果表明,随着Fe源温度由1090℃升高至1108℃,Fe原子作为深能级受体有效补偿了背景电子^[25],使样品的电子浓度从 10^{16} cm^{-3} 数量级迅速降至 10^{13} cm^{-3} 数量级.与此同时,样品的电阻率从 $40.18\text{ }\Omega\cdot\text{cm}$ 迅速提高至 $381.82\text{ }\Omega\cdot\text{cm}$,电子迁移率从 $18.10\text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 大幅提高至 $796.89\text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$.而当Fe源温度进一步升至1112℃时,样品的3类电学参数均出现一定程度的退化.这一演变趋势与前文HRXRD分析中晶格常数与摇摆曲线FWHM随Fe掺杂浓度的演变规律一致.综合来看,Fe源温度为1108℃时的样品表现出最优的综合电学性能.

3.5 载流子寿命测试

飞秒激光脉冲激发后的载流子寿命是决定THz-PCA性能的核心参数之一.当飞秒泵浦脉冲将电子从材料价带激发至导带时,受泡利阻塞效应影响,材料在探测光频率处的吸收系数发生变化.根据克拉莫斯-克勒尼关系,吸收系数的变化将引起折射率的相应变化,进而导致材料的反射率或透

射率发生突变.由于Fe掺杂在InGaAs中引入了高密度的深能级缺陷,这些缺陷通过肖克利-里德-霍尔复合机制迅速捕获电子与空穴,使得泡利阻塞状态解除,反射率或透射率随之逐渐恢复至激发前水平.基于这一物理过程,利用飞秒瞬态泵浦-探测技术测量样品的瞬态反射谱或透射谱,已成为获取InGaAs:Fe材料中超短载流子寿命的标准手段.电子寿命 τ 对应飞秒泵浦光激发之后,探测脉冲透射率或反射率降至最大值 $1/e$ 所经历的时间,其物理本质是载流子从导带被捕获至带隙中间所需要的特征时间,在实际数据处理中,通过单指数函数拟合衰减曲线是提取载流子寿命参数的标准方法^[2,26,27].针对Fe掺杂InGaAs材料的动力学理论分析进一步证实,光激发后导带载流子浓度以电子捕获时间 τ 表现出单指数函数衰减特征,因此可通过对透射率或反射率进行单指数拟合来确定 τ ^[14].图7给出了Fe源温度为1108℃时样品在1550 nm波长飞秒激光激发下的瞬态反射谱,我们对其衰减过程进行单指数拟合.结果显示,提取到的载流子寿命仅为 $(0.65\pm 0.01)\text{ ps}$,且决定系数 R^2 达0.996.这表明测试数据高度符合单指数衰减规律,验证了实验结果与理论分析的一致性.该载流子寿命与使用GS-MBE生长出来的LT-InGaAs:Fe薄膜^[14]以及与Be掺杂InGaAs/InAlAs超晶格材料^[18]的载流子寿命相当,优于无掺杂的InGaAs/InAlAs超晶格材料^[28].上述结果表明,使用SS-MBE制备的LT-InGaAs:Fe薄膜,可满足THz-PCA对材料载流子寿命的要求.

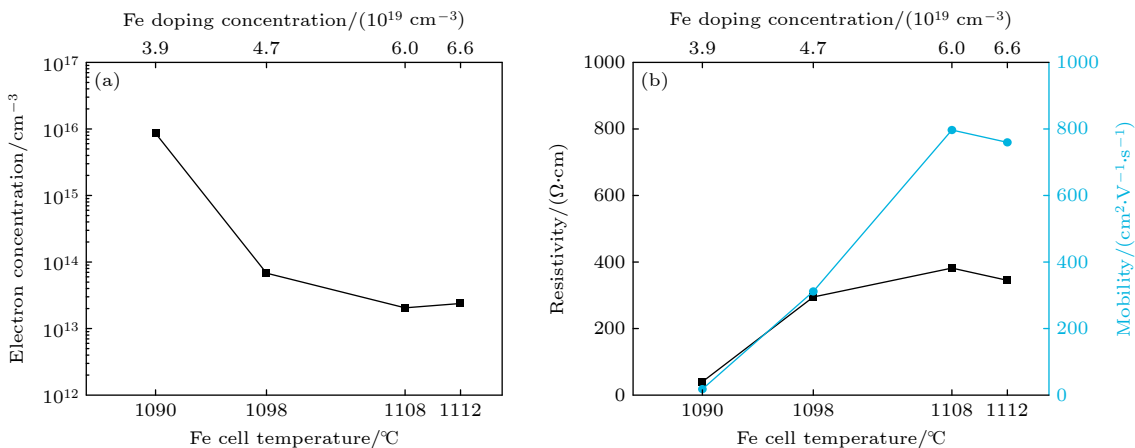


图6 N型导电InGaAs:Fe样品电学性质随Fe源温度的变化 (a)电子浓度随Fe源温度的变化;(b)电阻率及电子迁移率随Fe源温度的变化

Fig. 6. Electrical properties of n-type conductive InGaAs:Fe samples versus Fe source temperatures: (a) Electron concentration versus Fe source temperatures; (b) resistivity and electron mobility versus Fe source temperatures.

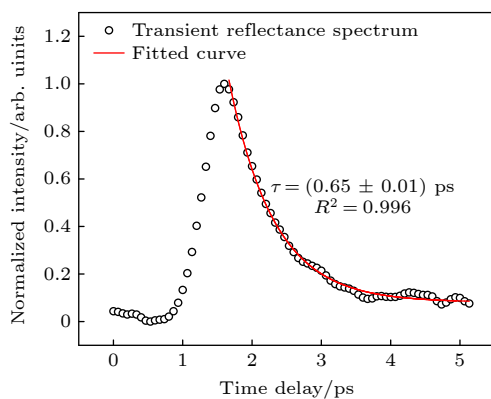


图 7 Fe 源温度为 1108 °C 时样品的飞秒瞬态反射谱
Fig. 7. Femtosecond transient reflectivity spectrum of the sample grown at an Fe source temperature of 1108 °C.

4 结 论

本文利用 SS-MBE 在半绝缘 InP:Fe 衬底上成功低温外延了一系列不同 Fe 掺杂浓度的 InGaAs:Fe 薄膜样品. HRXRD 结果证实样品外延层具有良好的晶体质量. TEM 与 EDS 结果表明, InGaAs:Fe 外延层与 InAlAs 缓冲层之间过度陡峭、具有明确分界, 且 Fe 元素在 InGaAs:Fe 外延层中分布均匀. 霍尔效应测试表明, 精确调控 Fe 掺杂浓度是获得合适 THz-PCA 材料的关键: 过高的 Fe 掺杂会诱使材料向 P 型导电转变, 而掺杂不足则难以有效降低电子浓度、无法兼顾高电阻率与高载流子迁移率. 实验发现, Fe 源温度为 1108 °C (对应掺杂浓度为 $6.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) 时, 样品表现出的最优的综合性能: 载流子浓度降至 $2.05 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, 电阻率达到 $381.82 \text{ } \Omega \cdot \text{cm}$, 载流子迁移率达到 $796.89 \text{ cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$, 载流子寿命仅为 0.65 ps, 可满足 THz-PCA 对于材料的要求. 后续研究拟结合 XAFS 深入探究 Fe 原子在 LT-InGaAs 中的占位情况, 并基于该 LT-InGaAs:Fe 薄膜材料开发高性能 THz-PCA, 以期推动太赫兹技术的发展.

参考文献

[1] Koch M, Mittleman D M, Ornik J, Castro-Camus E 2023 *Nat. Rev. Methods Primers* **3** 48

[2] Dohms A, Vieweg N, Breuer S, Heßelmann T, Herda R, Regner N, Keyvaninia S, Gruner M, Liebermeister L, Schell M, Kohlhaas R B 2024 *IEEE Trans. THz Sci. Technol.* **14** 857

[3] Neu J, Schmuttenmaer C A 2018 *J. Appl. Phys.* **124** 231101

[4] Pakluea S, Chia J Y, Jitvisate M, Thongbai C, Rimjaem S 2025 *Infrared Phys. Technol.* **151** 106060

[5] Tani M, Matsuura S, Sakai K, Nakashima S 1997 *Appl. Opt.* **36** 7853

[6] Venkatesh M, Rao K S, Abhilash T S, Tewari S P, Chaudhary A K 2014 *Opt. Mater.* **36** 596

[7] Yan Z J, Shi W 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 248704 (in Chinese) [闫志中, 施卫 2021 物理学报 **70** 248704]

[8] Bacon D R, Madéo J, Dani K M 2021 *J. Opt.* **23** 064001

[9] Chen C, Wu R Q, Qin F F, Sun Y H, Liu W J 2025 *Semicond. Sci. Technol.* **40** 063001

[10] Burford N M, El-Shenawee M O 2017 *Opt. Eng.* **56** 010901

[11] Takazato A, Kamakura M, Matsui T, Kitagawa J, Kadoya Y 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 101119

[12] Takazato A, Kamakura M, Matsui T, Kitagawa J, Kadoya Y 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 011102

[13] Wood C D, Hatem O, Cunningham J E, Linfield E H, Davies A G, Cannard P J, Robertson M J, Moodie D G 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 194104

[14] Globisch B, Dietz R J B, Kohlhaas R B, Göbel T, Schell M, Alcer D, Semtsiv M, Masselink W T 2017 *J. Appl. Phys.* **121** 053102

[15] Kohlhaas R B, Breuer S, Liebermeister L, Nellen S, Deumer M, Schell M, Semtsiv M P, Masselink W T, Globisch B 2020 *Appl. Phys. Lett.* **117** 131105

[16] Kostakis I, Saeedkia D, Missous M 2012 *IEEE Trans. THz Sci. Technol.* **2** 617

[17] Xu J X, Li J L, Wei S H, Ma B, Zhang Y, Zhang Y, Ni H Q, Niu Z C 2017 *Chin. Phys. B* **26** 088702

[18] Kohlhaas R B, Dietz R J B, Breuer S, Nellen S, Liebermeister L, Schell M, Globisch B 2018 *Opt. Lett.* **43** 5423

[19] Jiang Q N, Tan Z Y, Cao J C 2025 *Chin. Opt. Lett.* **23** 113701

[20] Tell B, Koren U, Miller B I 1987 *J. Appl. Phys.* **61** 1172

[21] Guo Z L, Wang W J, Qu H D, Fan L Y, Zhu Y C, Wang Y J, Zheng C L, Wang X J, Chen P P, Lu W 2024 *J. Infrared Millim. Waves* **43** 63 (in Chinese) [郭子路, 王文娟, 曲会丹, 范柳燕, 诸毅诚, 王亚杰, 郑长林, 王兴军, 陈平平, 陆卫 2024 红外与毫米波学报 **43** 63]

[22] Noh Y K, Lee S T, Kim M D, Oh J E 2017 *J. Cryst. Growth* **460** 37

[23] Arrhenius S 1889 *Z. Phys. Chem.* **4U** 96

[24] Cohen R E, Lide D, Trigg G 2003 *AIP Physics Desk Reference* (New York: Springer) p832

[25] Srocka B, Scheffler H, Bimberg D 1994 *Phys. Rev. B* **49** 10259

[26] Baker C, Gregory I S, Tribe W R, Bradley I V, Evans M J, Linfield E H, Missous M 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 4965

[27] Globisch B, Dietz R J B, Stanze D, Göbel T, Schell M 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 172103

[28] Park D W, Kim J S, Ji Y B, Oh S J, Jeon T I, Noh S K 2018 *Appl. Sci. Converg. Technol.* **27** 173

Solid source molecular beam epitaxy growth and physical properties of low-temperature-grown Fe-doped InGaAs films for terahertz photoconductive antennas*

YIN Yukun¹⁾²⁾ YANG Wenlong¹⁾ HOU Xiyu¹⁾²⁾ SHI Haiyan¹⁾²⁾
LI Donghai¹⁾²⁾ ZHANG Zitong^{3)†} PAN Dong^{1)2)‡}

1) (*State Key Laboratory of Semiconductor Physics and Chip Technologies, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

2) (*College of Materials Science and Opto-Electronic Technology, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

3) (*Huazhong Institute of Electro-Optics—Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, Wuhan 430223, China*)

(Received 5 January 2026; revised manuscript received 21 January 2026)

Abstract

To address the growing demand for high-performance photoconductive materials compatible with fiber-based 1550 nm lasers in terahertz photoconductive antennas, this study systematically investigates the growth and physical properties of low-temperature Fe-doped InGaAs (InGaAs:Fe) films fabricated by solid-source molecular beam epitaxy. A series of InGaAs:Fe films with varied Fe doping concentrations are epitaxially grown on semi-insulating InP:Fe substrates to optimize the electrical and optical characteristics required for efficient terahertz generation and detection. The experimental approach combines advanced materials characterization with electrical and ultrafast optical measurements. The Fe doping level is precisely tuned by controlling the Fe source temperature from 1090 °C to 1120 °C, yielding estimated doping concentrations ranging from $\sim 3.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ to $6.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. High-resolution X-ray diffraction and transmission electron microscopy coupled with energy-dispersive X-ray spectroscopy are employed to examine crystalline quality, microstructure, and elemental distribution. Electrical properties are evaluated using room-temperature Hall effect measurements, and carrier dynamics are probed via femtosecond transient reflectance spectroscopy. The structural analysis confirms that InGaAs:Fe films grown at Fe source temperatures up to 1114 °C exhibit high crystalline perfection without detectable phase separation or Fe clustering. However, at 1120 °C, Fe-rich nanoclusters form, leading to phase separation and degraded crystal quality. High-resolution X-ray diffraction rocking curves and lattice parameter evolution further indicated that Fe incorporation influences the lattice strain through a combination of substitutional and interstitial occupancy, with optimal structural coherence observed at intermediate doping levels. Electrically, the films show a strong doping-dependent behavior. As the Fe concentration increases, the carrier concentration drops sharply from $\sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ to $\sim 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, while the resistivity rises from tens to hundreds of $\Omega\text{-cm}$ and the electron mobility improves significantly. The sample grown at an Fe source temperature of 1108 °C (corresponding to $[\text{Fe}] \approx 6.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) delivers the best overall performance: a low carrier concentration of $2.05 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, a high resistivity of 381.82 $\Omega\text{-cm}$, and a high electron mobility of 796.89 $\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. Moreover, this sample maintains N-type conductivity, which is essential for terahertz

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. U25D8011, 12374459), the Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDB0460000), and the Youth Innovation Promotion Association, Chinese Academy of Sciences (Grant Nos. 2017156, Y2021043).

† Corresponding author. E-mail: zhang-zt18@tsinghua.org.cn

‡ Corresponding author. E-mail: pandong@semi.ac.cn

photoconductive antenna operation. Femtosecond pump-probe measurements revealed an ultrashort carrier lifetime of (0.65 ± 0.01) ps, comparable to state-of-the-art materials grown by gas-source molecular beam epitaxy, confirming the suitability of solid-source molecular beam epitaxy-grown InGaAs:Fe for ultrafast photoconductive applications. In conclusion, this work demonstrates that solid-source molecular beam epitaxy is a capable and safe technique for producing high-quality Fe-doped InGaAs films with tailored electrical and transient optical properties. The optimized InGaAs:Fe film with $[\text{Fe}] \approx 6.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ simultaneously fulfills the key requirements for terahertz photoconductive antennas: high resistivity, high mobility, N-type conductivity, and sub-picosecond carrier lifetime. These results provide a reliable materials platform for the development of compact, high-sensitivity, and broadband terahertz systems operating at the telecommunications wavelength of 1550 nm.

Keywords: Fe-doped InGaAs, film, molecular beam epitaxy, microstructure, transport properties

DOI: [10.7498/aps.75.20260014](https://doi.org/10.7498/aps.75.20260014)

CSTR: [32037.14.aps.75.20260014](https://cstr.net.cn/ipac/32037.14.aps.75.20260014)



面向太赫兹光电导应用的Fe掺杂InGaAs薄膜固源分子束外延生长与物性研究

殷钰坤 杨文龙 侯曦宇 师海彦 李东海 张梓桐 潘东

Solid source molecular beam epitaxy growth and physical properties of low-temperature-grown Fe-doped InGaAs films for terahertz photoconductive antennas

YIN Yukun YANG Wenlong HOU Xiyu SHI Haiyan LI Donghai ZHANG Zitong PAN Dong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 090804 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20260014

CSTR: 32037.14.aps.75.20260014

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20260014>

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

二维磁性过渡金属卤化物的分子束外延制备及物性调控

Two-dimensional magnetic transition metal halides: molecular beam epitaxy growth and physical property modulation

物理学报. 2022, 71(12): 127505 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220727>

MnTe单晶薄膜的外延制备、本征点缺陷结构及电输运优化

epitaxial growth, intrinsic point defects and electronic transport optimization of MnTe films

物理学报. 2022, 71(13): 137102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212350>

利用InAs/GaAs数字合金超晶格改进InAs量子点有源区的结构设计

Improving structure design of active region of InAs quantum dots by using InAs/GaAs digital alloy superlattice

物理学报. 2023, 72(12): 128101 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230270>

Au(111)薄膜表面等离激元和热载流子输运性质的理论研究

Theoretical study on surface plasmon and hot carrier transport properties of Au(111) films

物理学报. 2022, 71(22): 227801 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221166>

晶格匹配InAs/AlSb超晶格材料的分子束外延生长研究

Growth of lattice matched InAs/AlSb superlattices by molecular beam epitaxy

物理学报. 2023, 72(1): 014203 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221383>

InSb(111)衬底上外延生长二维拓扑绝缘体锡烯/铋烯的差异性研究

Comparative study on epitaxial growth of stanene and bismuthene on InSb(111) substrate

物理学报. 2022, 71(18): 186401 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221024>