

GaAs 中光生重空穴散射的飞秒光谱*

张海潮 文锦辉 郭 冰 林位株

(中山大学物理学系 超快速激光光谱学国家重点实验室, 广州 510275)

摘要: 采用可调谐飞秒激光光谱技术, 研究 GaAs 中光生重空穴的超快弛豫动力学过程。测得重空穴的弛豫时间为 150fs, 表明空穴的热弛豫由空穴-空穴散射和空穴吸收光学声子共同决定。给出光生空穴的空穴-空穴散射率公式, 说明价带类 $|p\rangle$ 波函数的各向异性使得低能量空穴的散射率变小。计算得到的空穴弛豫时间与实验结果较好符合。

关键词: 飞秒激光光谱; 空穴-空穴散射; GaAs

PACC: 7847; 7855

中图分类号: O481 **文献标识码:** A **文章编号:** 0253-4177(2000)09-0867-05

Femtosecond Spectroscopy of Heavy Hole Scattering in GaAs^{*}

ZHANG Hai-chao, WEN Jin-hui, GUO Bing and LIN Wei-zhu

(State Key Laboratory of Ultrafast Laser Spectroscopy, Department of Physics,
Zhongshan University, Guangzhou 510275, China)

Received 15 July 1999, revised manuscript 19 October 1999

Abstract: The ultrafast dynamics of photoexcited holes in i : GaAs is studied by femtosecond spectroscopy. A heavy-hole scattering time of 150fs is measured. It is shown that both hole-hole scattering and hole-phonon scattering thermalize the cool heavy hole to the equilibrium with lattice. An expression of hole-hole scattering rate is presented and the calculated values of heavy-hole scattering rate are well consistent with the experimental results.

Key words: femtosecond laser spectroscopy; hole-hole scattering; GaAs

PACC: 7847; 7855

Article ID: 0253-4177(2000)09-0867-05

* 国家自然科学基金资助项目(69676015) [Project Supported by National Natural Science Foundation of China (No. 69676015)].

张海潮 男, 1963 年出生, 讲师, 博士生, 研究方向为超快激光光谱学和光电子学[ZHANG Hai-chao, male, born in 1963, lecture, doctor postgraduate. Researching direction: ultrafast laser spectroscopy and optoelectronics]. 1999-07-15 收到, 1999-10-19 定稿

1 引言

研究 GaAs 中光生空穴的超快弛豫现象对于理解非平衡载流子的基本动力学和研制快速光电装置皆具有重要意义^[1-6]. 在这一研究中人们首先遇到的困难是, 如何把空穴对瞬态激光光谱的贡献同电子的贡献区分开来. Zhou 和 Chebira 两个小组利用时间分辨荧光技术对 n 型掺杂 GaAs 中的光生空穴做过研究^[7,8], 在这些实验中掺杂注入的电子起着与光生空穴复合的冷电子库作用, 通过对荧光的测量获得空穴冷却的动力学信息. 这些研究主要揭示了空穴发射光学声子的过程. Langot 等人^[2,9]利用双波长飞秒饱和吸收技术研究本征 GaAs 中低能量重空穴的热化动力学. 其基本思想是低能量激发、较高能量探测, 从而获得了空穴吸收光学声子的信息. Ganikhanov 等^[10]采用光子能量为 1.52eV 的激发光在价带产生空穴, 并探测从重空穴(HH) 及轻空穴(LH) 价带到自旋分裂带(SO) 的跃迁, 直接测量了空穴的弛豫过程. 他们测得重空穴的初始散射时间小于 75fs.

本文依据 GaAs 重空穴与电子的有效质量比很大的特性, 采用可调谐飞秒泵浦-探测技术研究空穴弛豫的超快动力学. 我们仔细选择较低的泵浦-探测光子能量(1.452eV)使 GaAs 中的光生重空穴的初始散射在飞秒饱和吸收谱中占主导地位, 测得本征 GaAs 中的光生重空穴的弛豫时间为 150fs. 与理论计算结果 160fs 基本一致.

2 原理与实验

2.1 空穴对泵浦探测信号的贡献

在飞秒泵浦-探测实验中, 超短泵浦激光脉冲通过样品时, 由于带间吸收, 就会在样品中产生非平衡电子-空穴布居并降低对探测光的吸收, 此所谓吸收饱和. 随着受激载流子布居的减小, 样品对探测光的吸收亦随之增加. 于是, 通过跟踪探测脉冲的时间分辨微分透射谱, 便可获得载流子布居的瞬态信息. 探测光的微分透射率正比于带间吸收系数 α 的相对变化 $\Delta\alpha/\alpha$, 其中^[2],

$$\alpha = \sum_e \alpha_0 C_e(\hbar\omega, \rho) \sqrt{\hbar\omega - E_g(\rho)} [1 - f_e(k) - f_v(k)] \quad (1)$$

式中 α_0 是未受激发时的带间吸收系数; ρ 为载流子浓度; $E_g(\rho)$ 是存在浓度为 ρ 的电子-空穴等离子体时的带隙能量; $C_e(\hbar\omega, \rho)$ 是 Coulomb 增强因子; $f_e(k)$ 和 $f_v(k)$ 分别是电子和空穴在波矢为 k 的探测状态的布居. 可见, 电子和空穴的带填充均对吸收饱和光谱有贡献. 在光注入电子-空穴等离子体的初始时刻, 波矢守恒决定了电子和空穴在 k -空间具有相同的分布函数, 并且快速向准平衡态弛豫. 空穴的有效质量比电子的有效质量大得多, 这造成空穴在 k -空间的热平衡分布比电子的热平衡分布扩展很多, 因此, 就可选择实验条件使电子或者空穴的带填充效应在瞬态吸收饱和光谱中起主导作用. 根据泵浦探测原理, 探测光在某波矢位置测量到的饱和吸收信号的强弱可由在该处的初始布居数与热平衡布居数之差表征. 我们用 Δf_i 表示这一布居数变化, $i = e, v$ 分别代表导带电子和价带空穴. 定义空穴和电子布居数变化的对比率为:

$$Y = \frac{\Delta f_v - \Delta f_e}{\Delta f_v + \Delta f_e} \quad (2)$$

图 1 是本征 GaAs 在室温下的对比率 Y 随泵浦-探测光子能量的变化曲线(激发浓度为 $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, 插图是 GaAs 的能带图, 带隙能量 E_g 取 1.424eV). 显然, 当 $Y < 0$ 时, 表示在所探测的波矢状态, 电子的布居数变化大于空穴的布居数变化, 因此电子的弛豫在饱和吸收谱中占优势; 反之, 当 $Y > 0$ 时, 空穴的弛豫在饱和吸收谱中占优势. 我们看到, 对于本征 GaAs, 泵浦-探测光子的能量在 1.45eV 附近时, 电子的贡献最小, 空穴的贡献最大. 因此, 测量此种情形下的饱和吸收光谱就可获得本征 GaAs 空穴弛豫的信息. 光生轻空穴数目比重空穴少一半^[3,9], 我们忽略其对泵浦-探测信号的贡献, 即认为泵浦-探测信号主要由光生重空穴的弛豫决定. 总之, 室温下选择泵浦-探测光子的能量在 1.45eV 左右后, 测量信号的初始弛豫部分主

要反映光生重空穴的弛豫过程, 图 1 取载流子的初始分布为高斯分布, 激光脉宽为 60fs。载流子的热平衡分布取室温下的费密分布^[3], 电子子系和空穴子系的化学势采用了 Nilsson 近似^[3,4]。

2.2 实验与结果

实验研究是采用典型的可调波长飞秒脉冲泵浦-探测技术, 由钛宝石激光器输出的重复频率为 90MHz、脉宽为 60fs 的激光脉冲经一类似迈克尔逊干涉仪测量装置的分束器分为泵浦和探测两束, 两者的偏振方向平行, 强度比为 4:1。激发载流子的浓度 $\sim 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。实验采用的样品是本征 GaAs(i:GaAs)。图 2 是泵浦-探测光波长为 854nm(即光子能量为 1.452eV)时, i:GaAs 的飞秒饱和吸收实验曲线和与之重叠拟合曲线。实验曲线已扣除相干耦合假象, 拟合曲线是泵浦-探测脉冲光强度自相关曲线与包含有弛豫时间常数的指数

型响应函数 $G(t)$ 的卷积。从实验曲线拟合得到 GaAs 样品的初始弛豫时间约为 150fs。

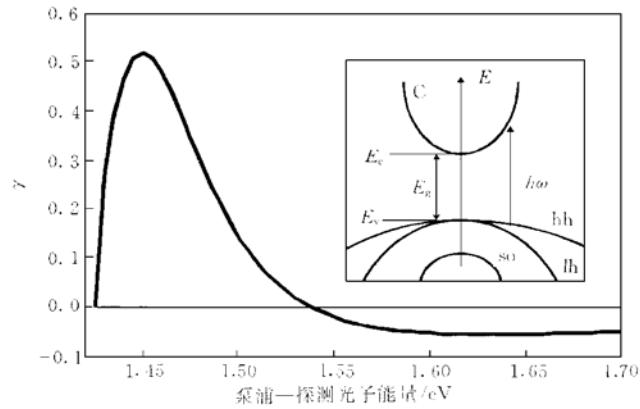


图 1 本征 GaAs 在室温下的对比率 Y 随泵浦-探测光子能量的变化曲线
光生载流子浓度 $N = 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。插图是 GaAs 的能带图, E_c 和 E_v 分别为导带底和价带顶能量, $\hbar\omega$ 为泵浦-探测光子的能量, 带隙能量 E_g 取 1.424eV。

FIG. 1 Curve of Comparative Rate of Inherent GaAs of Room Temperature with Photo Energy of Bump-Detection
Photo Excited Carried Density $N = 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$
Insert picture is energy band figure of GaAs, E_c and E_v are energies of bottom of conductive band and top of valued band respectively, $\hbar\omega$ is energy of photons of bump-detection, band gap energy E_g is taken 1.424eV

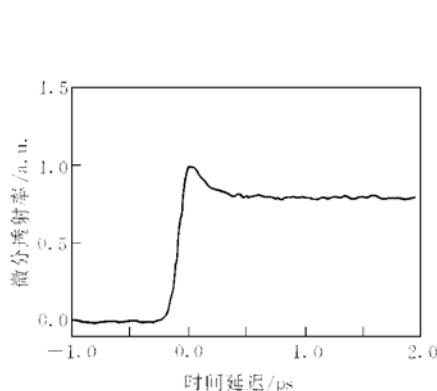


图 2 室温下 i:GaAs 的飞秒饱和吸收实验曲线和拟合曲线; 泵浦-探测光子能量为 1.452eV; 脉冲宽度为 60fs; 光生载流子浓度 $N = 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。

FIG. 2 Femtosecond Saturated Absorbent Test

Curve in GaAs at Room Temperature

Dotted line is fitting curve, photon energy by bump-detection is 1.452eV, pulse width is 60fs, photoexcited carried density $N = 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

3 讨论

前面论证了泵浦-探测光子的能量在 1.45eV 左右时, 测量信号的初始弛豫部分主要反映本征 GaAs 光生重空穴的弛豫过程, 所以实验测量值 150fs 就是光生重空穴的弛豫时间。光生重空穴的过超能量^[3](4meV) 小于室温下的平均能量($\sim 3/2k_B T_L = 39\text{meV}$), 它将从晶格吸收能量以达到热平衡。初始时, 空穴的过超能量(也就是空穴的动能)很小且它在动量空间中的分布很窄, 而热化后空穴的平均动能增加, 其分布扩展得很宽, 所以, 初始分布与热平衡分布差别很大。于是空穴的弛豫在泵浦探测信号的初始弛豫中起主导作用。

光注入空穴通过各种散射机制快速向热平衡态弛豫。但载流子与声学声子作用交换的能量很小, 属于弹性散射, 一般不需考虑; 另外, 由于空穴与电子的质量比很大, 电子对空穴的散射率远远小于空穴-空穴散射率, 因此空穴的热化弛豫过程将主要由空穴-空穴散射以及空穴-光学声子的散射决定^[2,10]。

光生重空穴的初始动能通常都很低, 因碰撞交换的能

量远小于等离激元的能量, 所以, 对空穴-空穴散射可采用静态屏蔽^[6, 9]. 考虑到价带类| p ⟩波函数的各种异性对空穴散射率的影响^[5, 6, 14], 我们得到空穴-空穴散射率的近似表达式^[17],

$$S_{vv}^-(k_0, N) = \left[\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right]^2 \frac{3\pi N m_v}{\epsilon_{(0)}^2 h k_0 q_D^2} \left[\frac{17}{16} - \frac{q_D}{16k_0} \left[15 \arctan \left(\frac{k_0}{q_D} \right) + \arctan \left(\frac{2k_0}{q_D} \right) \right] \right] \quad (3)$$

其中 N 为光激发浓度; k_0 是光激发载流子的中心波矢; q_D 是 Debye-Hückel 波矢^[5, 6]. 设载流子初始分布为高斯型, 我们得到,

$$q_D^2 = \frac{e^2 N (m_e + m_v)}{\epsilon_0 \epsilon_{(\infty)} h k_0^2} \quad (4)$$

其中 m_e 和 m_v 分别是电子有效质量和空穴有效质量; ϵ_0 、 $\epsilon_{(0)}$ 和 $\epsilon_{(\infty)}$ 分别为真空介电常数、半导体的低频介电常数和高频介电常数(本文取 $m_e = 0.066m_e$, $m_v = 0.45m_e$, m_e 是自由电子质量; $\epsilon_{(0)} = 12.9$, $\epsilon_{(\infty)} = 10.9$ ^[11]).

图 3 为空穴-空穴散射率与空穴初始动能的关系曲线. 我们看到, 空穴初始动能越大, 即波矢 k 越大, 散射速率越大.

为了定量分析实验结果, 我们须回顾一下空穴与光学声子的散射. 图 4 中曲线 a 和 b 分别为室温下不同初始动能的空穴对极性光学声子和对非极性光学声子的吸收率的计算曲线. 对空穴-非极性光学声子散射, 光学形变势常数的取法不尽一致(在 10—41eV 范围内变化^[11]), 我们取光学形变势常数 $d_0 \sim 41\text{eV}$ ^[9, 7]. 从图 4 看到, 吸收率主要由空穴-极性光学声子散射决定, 所以, 这里的光学形变势常数的选取并不是举足轻重的.

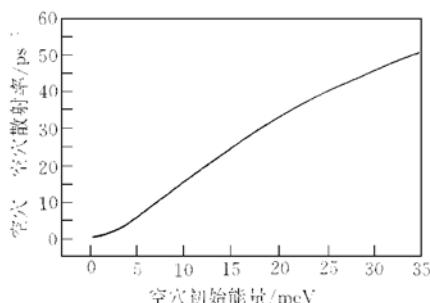


图 3 i : GaAs 中空穴-空穴散射率随空穴初始动能变化的理论曲线

光生载流子浓度 $N = 3 \times 10^{17}\text{cm}^{-3}$.

FIG. 3 Theory Curve of Hole-Hole Scattering Rate in GaAs with Original Dynamic Energy of Holes
Photoexcited carried density $N = 3 \times 10^{17}\text{cm}^{-3}$.

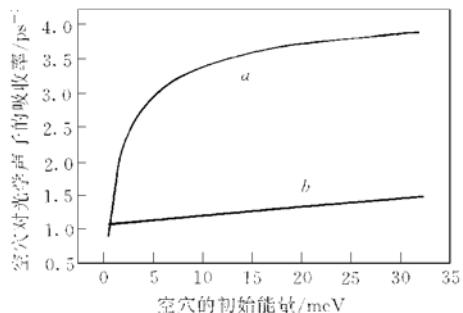


图 4 在室温下, i : GaAs 中的空穴对极性光学声子的吸收率随空穴初始动能变化的理论曲线(曲线 a); i : GaAs 中的空穴对非极性光学声子的吸收率随空穴初始动能变化的理论曲线(曲线 b)

FIG. 4 At Room Temperature, Theory Curve of the Holes in i : GaAs Against Absorbed Rate of Pole Optical with Changing of Original Dynamic Energy of Hole (Curve a); Theory Curve of Holes in i : GaAs Against Absorbed Rate of Unpole Optical Phonon with Changing of Orginal Dynamic Energy of Hole(Curve b).

对我们上述的实验参数, 由图 4 知空穴对光学声子的总吸收率为 3.6ps^{-1} . 同时, 根据(3)式计算得到空穴-空穴散射率为 2.6ps^{-1} , 空穴总的散射速率为 6.2ps^{-1} , 即空穴的散射时间为 160fs , 与实验测量结果 150fs 基本符合.

前文所述, Ganikhanov 等人^[10]曾测得空穴的初始散射时间小于 75fs . 这是因为其受激空穴的能量较高(约为 12meV), 其散射速率亦较高之故.

4 结论

我们研究了室温下 GaAs 重空穴的超快弛豫特性。理论和实验结果表明,当泵浦-探测光波长为 854nm 时,测量到的吸收饱和信号中的亚皮秒级的成分反映着重空穴的热弛豫过程,实验测得其热弛豫时间~150fs,与理论计算的散射时间 160fs 比较吻合。分析表明,空穴-空穴散射是空穴弛豫的重要途径。

参 考 文 献

- [1] X. Q. Zhou, K. Leo and H. Kurz, Phys. Rev., 1992, **B45**: 3886—3889.
- [2] P. Langot, R. Tommasi and F. Vallee, Phys. Rev., 1996, **B54**: 1775—1784.
- [3] B. R. Bennett, R. A. Soref and J. A. Del Alamo, IEEE JQE, 1990, **26**: 113—122.
- [4] N. G. Nilsson, Appl. Phys. Lett., 1978, **33**(5) : 653—654.
- [5] B. K. Ridley, Quantum Processes in Semiconductors, New York: Oxford University Press, 1982, **85**: 179.
- [6] J. H. Collet, Phys. Rev., 1993, **B47**: 10279—10291.
- [7] T. Brudevoll, T. A. Fjeldly, J. Baek *et al.*, J. Appl. Phys., 1990, **67**(10) : 7373—7382.
- [8] A. Chebira, J. Cesnoy and G. M. Gale, Phys. Rev., 1992, **B46**: 4559—4563.
- [9] N. Del Fatti, P. Langot, R. Tommasi *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1997, **71**(1) : 75—77.
- [10] F. Ganikhanov, K. C. Burr and C. L. Tang, Appl. Phys. Lett., 1998, **73**(1) : 64—66.
- [11] M. A. Oxman and D. K. Ferry, Phys. Rev., 1987, **B36**: 6018—6032.
- [12] R. P. Joshi, R. O. Grondin and D. K. Ferry, Phys. Rev., 1990, **B42**: 5685—5692.
- [13] R. Binder, D. Scott, A. E. Paul *et al.*, Phys. Rev., 1992, **B45**: 1107—1115.
- [14] J. D. Wiley, Phys. Rev., 1971, **B4**: 2485—2493.
- [15] W. Z. Lin, R. W. Schoenlein, J. G. Fujimoto and E. P. Ippen, IEEE JQE, 1988, **24**: 267—275.
- [16] R. Tommasi, P. Langot and F. Vallee, Appl. Phys. Lett., 1995, **66**(11) : 1361—1363.
- [17] 张海潮, 文锦辉, 郭冰, 林位株, 物理学报, 将发表[ZHANG Hai-chao, WEN Jin-hui, GUO Bing and LIN Wei-zhu, Acta Physics Sinica, to be published].