

AlGaAs/GaAs 多量子阱中相干控制光电流的超快弛豫^{*}

林位株, 寿倩, 刘鲁宁, 吴羽, 文锦辉, 赖天树
(中山大学光电材料与技术国家重点实验室 // 理工学院, 广东 广州 510275)

摘要: 在理论和实验上对室温下 AlGaAs/GaAs 量子阱中的相干控制光电流的超快动力学过程进行了研究。首次由密度矩阵和电子—空穴散射弛豫模型导出相干光电流的弛豫时间为 600 fs, 并由三波长飞秒脉冲泵浦—探测技术测量的结果得到验证。

关键词: 飞秒脉冲; 半导体量子阱; 光学相干控制

中图分类号: TN242; TN248.1 **文献标识码:** A

文章编号: 0529-6579 (2004) 06-0073-04

应用飞秒光脉冲相干控制技术在半导体中产生光电流的研究, 在固态光电子学方面具有重要的应用前景^[1-7]。用这种方法产生光电流, 光电响应速度快, 效率高, 且无需外加偏压, 因而在超高速光电信息科学技术中倍受重视。通常半导体中的光电流, 是指光生载流子在外电场或内建电场驱动下定向运动形成电流。与此不同, 相干控制光电流是应用两束频率不同但相位相关的飞秒光脉冲激发半导体样品, 对应的两种吸收路径产生的激发态的干涉导致光生载流子在动量空间的不对称分布, 使光生载流子一旦产生即具有很高的定向移动速度, 形成光电流^[6,7]。这种光电流的移动距离决定于载流子的初始速度和光电流的弛豫时间。以往的研究多集中在光生载流子的初始注入和光电流稳态的探测上, 而对光电流的弛豫过程却较少研究^[7]。一般来说, 载流子—载流子和载流子—光声子散射会强烈影响光电流弛豫, 它是理解相干控制光电流动力学过程的基础。本文基于密度矩阵理论和电子—空穴弹性散射近似, 研究了相干控制光电流的超快弛豫过程。在理论上首次导出了光电流的弛豫时间为几百个飞秒, 并且在三光束飞秒脉冲泵浦—探测实验测量上验证了这一结果, 为相干控制光电流的研究提供了新的资料。

1 相干控制光电流的密度矩阵理论

根据量子系统的密度矩阵理论, 相干控制光电流是在相位相关的基频和倍频脉冲光同时激发样品条件下, 源于三阶密度矩阵对角元的非线性过

程^[8], 即光电流为:

$$J = \sum_k \left[\frac{e\eta}{2\mu} \right] k \Delta \rho(k, t) \sin(\Delta \varphi) \quad (1)$$

其中, $\Delta \rho(k, t) = \Delta \rho(k) \exp(-\Gamma_c(k)t)$ 是 k 空间中注入载流子布居, 由系统的动量与两入射光波矢势的标积决定, $\Gamma_c(k)$ 是载流子布居弛豫率, 亦是相干光电流的弛豫率。 $\Delta \varphi = \varphi_{2\omega} - 2\varphi_\omega$ 是单光子吸收和双光子吸收之间相位差。光电流的动态方程为^[9]:

$$\frac{\partial J}{\partial t} = - \left[\frac{e\eta}{2\mu} \right] \sum_k \Gamma_c(k) k \Delta \rho(k, t) \sin(\Delta \varphi) \quad (2)$$

虽然, 从密度矩阵理论中可以导出相干光电流的瞬态过程, 但仍需要深入研究系统动量退相机制, 以计算相干光电流的弛豫速率。我们知道, 载流子动量弛豫是由两个散射过程组成: 载流子—载流子散射和载流子—光声子散射。在载流子密度较高时, 载流子—载流子散射是载流子动量弛豫的主要机制^[10-12]。特别是电子—重空穴散射被认为是最重要的载流子—载流子散射。因为重空穴的质量比电子的大得多, 电子—重空穴散射可以简化为杂质弹性散射。因此电流弛豫速率可以写成^[9]:

$$\Gamma(k) = \frac{-V}{(2\pi)^3} \int_0^\infty W(k, k') (\cos \chi - 1) dk' \quad (3)$$

其中, $V = 1/N$ 表示晶体单位体积, N 为载流子密度, $W(k, k')$ 表示从初始状态 k' 到末状态 k 的散射速率, 它与动量转换矩阵元有关。这里利用了 k 和 k' 之间变换而不改变结果的弹性散射近似。 χ 是 k 和 k' 之间的夹角。因为初始载流子在动量空间中分布在

^{*} 收稿日期: 2004-09-01

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (60178020, 10274107, 60378006); 广东省自然科学基金资助项目 (011204, 2002B11601)

作者简介: 林位株 (1939 年生), 教授, 博士生导师, E-mail: stslwz@zsu.edu.cn

沿 k 方向的较小方位角 θ 内, 矢量方程 (2) 简化为标量方程:

$$\frac{\partial}{\partial t} J(\theta) = - \left[\frac{e\eta}{2\mu} \right] \int \Gamma(\theta, k) k_0 \Delta \rho(\theta, k) \sin(\Delta \varphi) k^2 dk \tag{4}$$

在杂质弹性散射近似下, 由 (3) 式可导出

$$1/\Gamma(k) = \frac{8\pi \eta^3 \epsilon_0^2 \epsilon^2 k^3}{Nm_e E^4} \cdot \frac{1}{\ln[1 + (2kL_D)^2] - (2kL_D)^2 [1 + (2kL_D)^2]} \tag{5}$$

在 (5) 式中德拜长度 L_D 由温度和载流子密度决定。为估算光电流弛豫速率, 取实验中相关参数: $\lambda_{2\omega} = 700 \text{ nm}$, $N \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, $L_D = 5.1 \text{ nm}$, $k_0 = 6.2 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1}$, $\epsilon = 11$ 。得出 $\tau(k_0) = 1/\Gamma(k_0) \approx 600 \text{ fs}$ 。 $\tau(k_0)$ 很大程度上由光生载流子的密度及其过超能量决定。

假定激发光脉冲为高斯光束, 其偏振方向沿样品 $[110]$ 方向, 由 (4) 式可得相干光电流的简化表达式为:

$$J \propto \text{Im}(\eta^{xxx} + \eta^{yyx} + 2\eta^{xyy}) |A_1|^2 |A_2| \cdot \sin(\Delta \varphi) \exp\left[-\frac{t}{\tau_{cc}(k_0)}\right] \frac{X+Y}{\sqrt{2}} \tag{6}$$

和

$$\eta^{bcd} \propto \frac{V}{(2\pi)^3} \int dk p^a_{\mu, k} p^b_{\mu, k} p^c_{\mu, k} p^d_{\mu, k} \tag{7}$$

(6) 式中, η^{xxx} , η^{yyx} 和 η^{xyy} 是相干光电流注入张量的非零矩阵元, A_1, A_2 是两个激发光脉冲振幅。此式表明相干光电流方向沿激发光偏振方向, 其大小决定于样品在光波场作用下的三阶非线性极化, 并经受两个激发光脉冲相位差的调制和弛豫衰减。(6) 式与 Stevens 等^[7] 的表达式相近, 但多了一个表征相干光电流弛豫过程的时间因子, 这正是需要在实验上验证的。

2 三波长飞秒脉冲泵浦—探测技术

实验上检测相干光电流方法采用三光束飞秒脉冲泵浦—探测技术。先用波长分别为 $1.4 \mu\text{m}$ 和 $0.7 \mu\text{m}$ 、脉冲宽度约为 130 fs 的两列相位相关泵浦脉冲激发半导体 AlGaAs/GaAs 多量子阱样品, 产生相干光电流; 再用波长为 $0.8 \mu\text{m}$ 的相位相关探测光脉冲探测样品中光激发区域载流子密度的变化。我们知道, 相干光电流, 即载流子电荷包络移动距离主要是由载流子速度和电流弛豫时间决定。从上面我们计算得到的光电流弛豫速率以及光生载流子的过超能量 (它约等于激发光子能量减去量子阱样品能带隙能量, 约为 250 meV), 可以估算出光生载流

子的速度约为 $1\,000 \text{ km/s}$ 。因电荷包络运动, 光生载流子在被激发产生瞬间 600 fs 后, 离开激发区的距离约在几百纳米。这样就可以在激发区探测到载流子密度随时间的变化。因此, 探测光通过样品激发区后被吸收的情况就反映了相干光电流的变化规律。

图 1 是三光束飞秒脉冲相干控制光电流的激发—探测的实验装置示意图。波长分别为 $1.4 \mu\text{m}$ 的基频泵浦脉冲 (ω) 和波长为 $0.8 \mu\text{m}$ 的探测脉冲由重复率为 1 kHz 的飞秒光学参量放大系统 (Spectra-Physics OPA 800C) 同步发出, 再由分束片分为基频泵浦脉冲和探测脉冲。基频脉冲通过 BBO 晶体产生波长为 $0.7 \mu\text{m}$ 的倍频 (2ω) 泵浦脉冲。倍频脉冲的强度比基频脉冲的小 2 个数量级以上, 以使由单光子吸收和双光子吸收产生的受激载流子密度相近, 因前者的吸收系数远大于后者。两泵浦脉冲之间的相位变化由它们通过一个 1 mm 厚的 BK7 玻片来实现, 这个玻片可以微调入射角为两泵浦脉冲提供时间延迟。用一个 $\lambda/2$ 片旋转倍频光的偏振方向, 使之与基频光的偏振方向平行。用一个焦距为 10 cm 凹面镜将上述三色飞秒脉冲聚焦在样品上, 光斑直径约 $30 \mu\text{m}$ 。样品为 11 周期的 $\text{Ga}_{0.7}\text{Al}_{0.3}\text{As/GaAs}$ 多量子阱材料。样品上表面粘贴在宝石片上, 其下表面的 GaAs 衬底被研磨和选择性蚀刻去除, 以便透射测量。样品的 $[110]$ 方向平行于泵浦脉冲的偏振面。以使样品注入张量的 3 个分量 η^{xxx} , η^{yyy} 和 η^{xyx} 于激发光偏振方向产生最大光电流, 如图 1 内插图所示。

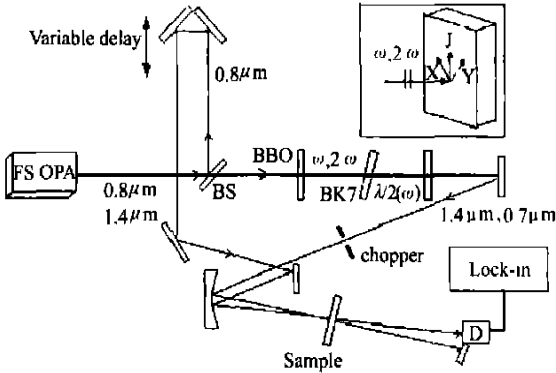


图 1 三光束飞秒脉冲相干控制光电流的激发—探测的实验装置示意图

Fig. 1 Schematic of the three-pulse pump-probe experiment
内插图示明样品的 $[110]$ 方向平行于泵浦脉冲的偏振面

3 相干控制光电流测量结果与讨论

图 2 显示了波长为 $0.8 \mu\text{m}$ 的探测光脉冲在 2

个泵浦光脉冲激发样品几个皮秒时间延迟后探测激发区时,透射光强度随两泵浦光脉冲相位差 $\Delta\varphi$ 的变化情况。

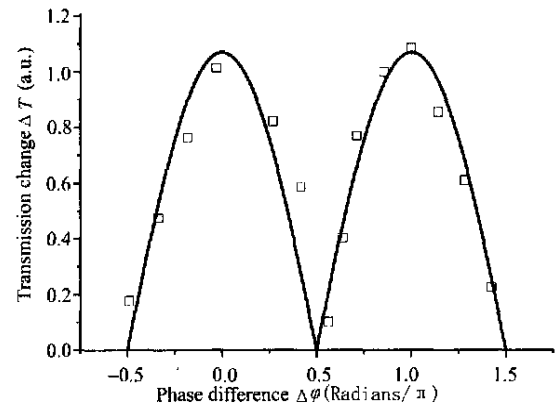


图 2 波长为 $0.8\text{ }\mu\text{m}$ 的探测光脉冲在 2 个泵浦光脉冲激发样品几个皮秒延迟后探测激发区时,透射光强度随两泵浦光脉冲相位差 $\Delta\varphi$ 的变化情况

Fig. 2 The transmission intensity variation versus the phase difference between two absorption pathways. The squares are the experimental data and the solid line is the theoretical fitting with function of $|\cos(\Delta\varphi)|$.
方形点表示实验测量值,它们随两泵浦光脉冲相位差 $\Delta\varphi$ 的变化规律和理论曲线 $|\cos(\Delta\varphi)|$ (实线) 相符合

光生载流子密度为 $\sim 10^{18}\text{ cm}^{-3}$, 探测光透过率变化 ΔT 大约是 1%。方形点表示实验测量值,它们随两泵浦光脉冲相位差 $\Delta\varphi$ 的变化规律和理论曲线 $|\sin(\Delta\varphi + \pi/2)| = |\cos(\Delta\varphi)|$ (实线) 相符合。 ΔT 随泵浦光相位差 $\Delta\varphi$ 遵循 $|\cos(\Delta\varphi)|$ 的变化关系,而非如 (6) 式所示的正弦变化关系,是因为 ΔT 与光电流信号 J 存在 $\pi/2$ 的相位差。当 $\Delta\varphi = -\pi/2, \pi/2, 3\pi/2$ 时,相干电流 $J(\Delta\varphi)$ 取极值,载流子布居包络偏移最大,样品对探测光的吸收最强,探测光透射率也就最低。当 $\Delta\varphi = 0, \pi$ 时,电流值为 0,不发生载流子布居包络的偏移,此时样品对探测光的吸收减少,光束透射率增高。随着泵浦光束相位差的改变,探测光的透射信号成周期性的大小变化,即样品对光的吸收受到泵浦光束相位差的周期性调制。而采用泵浦光与探测光完全重叠的方式监测载流子包络的偏移只能分辨偏移量的大小而不能分辨偏移的方向,所以要对拟合公式取绝对值。由图 2 可见,实验数据点很好地验证了理论预期结果。如果认为样品对探测光吸收的变化是由泵浦光束相位差对载流子布居数的相干控制效应而不是相干光电流效应引起,那么理论拟合函数应为 $\cos(\Delta\varphi)$,这显然与实验数据是不一致,从而进一步验证了探测光透射率的变化是由相干光电流效

应引起的。
可以通过探测光透过率在泵浦光相位差为 $\Delta\varphi = 0$ 和 $\pi/2$ 时的差异来估算载流子布居包络的移动情况。对于高斯型包络,载流子布居包络移动几百纳米,将引起探测光透过率变化在 10^{-2} 量级。这和实验中观测到的结果相近。这就意味着对初速度约为 $1\,000\text{ km/s}$ 的相干光电流来说,其弛豫时间应在几百个飞秒量级,与理论预期值相符。Stevens 等^[7] 曾用空间分离光学泵浦—探测技术研究相干光电流的弛豫,他们估计载流子布居包络的移动约几个纳米。这自然引起人们担心这一估计的可行性,因为对于直径为数十微米的激发光斑区域,几个纳米的光斑移动,引致探测光透过率的微小变化是很难测量的。

4 结 论

我们从理论上和实验上研究了 AlGaAs/GaAs 多量子阱中相干控制光电流的动力学过程。首次由密度矩阵理论和电子—空穴弹性散射弛豫模型,导出相干光电流的弛豫时间约为 600 fs,与用三波长飞秒脉冲泵浦—探测技术探测到的结果相符。这一结果揭示了我们能够通过控制 2 束飞秒光脉冲的相位变化来控制半导体中的光电流大小和方向。相干光电流的形成极快,仅依赖于激发光脉冲宽度,达到飞秒量级。光电流的弛豫也很快,它和材料的动量弛豫有关,在亚皮秒范围。相干光电流的这些特性在超高速光电子转换、光电开关和其他光信息处理技术中具有诱人的应用前景。进一步的研究将揭示在半导体、量子阱和其他光电信息材料中光学相干控制光电流的新特性。

参考文献:

[1] DUPONT E, CORKUM P B, LIU H C, et al. Phase-controlled currents in semiconductors[J]. Phys Rev Lett, 1995, 74 (18): 3596—3599.
[2] HACHÉ A, KOSTOULAS Y, ATANASOV R, et al. Observation of coherently controlled photocurrent in unbiased bulk GaAs[J]. Phys Rev Lett, 1996, 78(2): 306—309.
[3] van DRIEL H M. Coherent control of currents in semiconductors: a materials perspective[J]. Chem Phys, 2000, 251: 309—318.
[4] FRASER J M, HACHÉ A, SHKREBTII A I, et al. Three color coherent generation and control of current in low-temperature-grown GaAs[J]. Appl Phys Lett, 1999, 74 (14): 2014—2016.
[5] LAMAN N, HACHÉ A, SIPE J E, et al. Quantum interference control of currents in CdSe with a single optical beam[J]. Appl Phys Lett, 1999, 75(17): 2581—2583.

[6] SHEIK-BAHAE M. Quantum interference control of current in semiconductors; universal scaling and polarization effects [J] . Phys Rev B, 1999, 60(16) : R11257— R11260.

[7] STEVENS M J, NAJMAIE A, BHAT R D R, et al. Optical injection and coherent control of a ballistic charge current in GaAs / AlGaAs quantum wells[J] . J Appl Phys, 2003, 94 (8) : 4999.

[8] SHEN Y R. The principles of nonlinear optics[M] . New York: John Wiley & Sons Inc, 1984.

[9] SHOU Q, ZHANG H C, LIU L N, et al. The density matrix picture of laser coherent control current[J] . Science in China Ser G Physics, 2004, 47(2) : 231.

[10] ZHANG H C, LAI T S, LIN W Z, et al. Ultrafast dephasing of interband transition in semiconductors[J] . Science in China Ser A, 2001, 44: 1340.

[11] LEITENSTORFER A, FURST C, LAUVERAU A, et al. Femtosecond carrier dynamics in GaAs far from equilibrium [J] . Phys Rev Lett, 1996, 76: 1545.

[12] OUDAR J L, MIGUS A, HULIN D, et al. Femtosecond orientational relaxation of photoexcited carrier s in GaAs [J] . Phys Rev Lett, 1984, 53 (4) : 384.

Studies on the Ultrafast Relaxation of Coherent Control Photocurrent in AlGaAs /GaAs MQWs

LIN Wei zhu, SHOU Qian, LIU Lu ning, WU Yu, WEN Jin hui, LAI Tian shu
(State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies,
Sun Yat sen University, Guangzhou 510275, China)

Abstract: The ultrafast dynamics of coherent control photocurrent in AsGaAs /GaAs MQWs at room temperature is studied theoretically and experimentally. A ballistic photocurrent relaxation time of ~ 600 fs is deduced with the theory of density matrix and electron-hole scattering relaxation model. This result is evidenced with the three color femtosecond pulse pump probe measurements.

Key words: femtosecond pulses; semiconductor quantum wells; optical coherent control

(上接第 72 页)

母配分系数与旋量玻色—爱因斯坦凝聚

鲍 诚 光
(中山大学物理学系, 广东 广州 510275)

摘 要: 研究了由自旋为 1 的玻色子组成的 N -体系统的总自旋态。导出了具有 $\{N\}$ 和 $\{N-1, 1\}$ 对称性的总自旋态的母配分系数。这些系数使有关矩阵元的计算大为方便。因而它们将有助于建立一个关于旋量玻色爱因斯坦凝聚的改进了的理论, 其中总自旋 S 及它的 Z -分量 S_z 均得以守恒。

关键词: 玻色—爱因斯坦凝聚; 旋量玻色系; 母配分系数

中图分类号: O411.1; O552.5 **文献标识码:** A **文章编号:** 0529-6579 (2004) 06-0070-04