

文章编号: 0529-6579 (1999) 06-0021-05

n 型掺杂 GaAs 中电子与空穴的超快弛豫特性^{*}

张海潮, 黄 淳, 文锦辉, 赖天树, 林位株

(中山大学超快速激光光谱学国家重点实验室/物理学系, 广州 510275)

摘 要: 研究了 n 型重掺杂 GaAs 中的光生电子与空穴的超快弛豫特性. 在 n 型重掺杂情况下, 由于费米面已进入导带之中, 抑制了费米面附近光激发电子的弛豫过程对泵浦探测信号的贡献, 而突出了空穴弛豫在饱和吸收谱中的地位. 理论计算表明空穴通过吸收光声子在 ~ 300 fs 时间内达到与晶格热平衡, 并由此所导出的材料光学形变势常数 $d_0 = 31$ eV. 计算值与实验测量结果相符合.

关键词: 飞秒激光光谱学; n 型重掺杂 GaAs; 空穴-光学声子散射

中图分类号: O 472⁺. 3; TN 201 **文献标识码:** A

半导体中载流子的基本散射过程非常之快, 约在几十飞秒到几百飞秒. 人们用非相干光学技术 (比如时间分辨荧光技术和饱和吸收光谱技术), 在飞秒时间尺度上对载流子的能量交换和再分配过程进行了广泛研究, 已经揭示出载流子的基本散射过程的许多重要信息^[1~3]. 这些技术一般都基于带间的光学跃迁, 电子和空穴的弛豫都对观测信号有贡献. 然而, 由于半导体的能带结构特性, 对探测信号的解释比较复杂, 不容易把电子与空穴的贡献区分开来. 在高能量激发时, 往往忽略了空穴对瞬态测量信号的贡献. 这大概是基于以下理由: 即认为电子的过超能量比空穴大, 而其态密度则比空穴的少得多, 于是, 电子的响应对瞬态测量信号起决定作用. 因此, 尽管人们对电子的相互作用过程已经有了较好的了解, 但对空穴的弛豫动力学的认识还比较缺乏, 这就是为什么最近有关空穴的弛豫和输运特性的研究特别引起了人们的兴趣^[4~9].

本文介绍 n 型掺杂 GaAs 中的光生载流子的超快弛豫动力学, 分析电子和空穴对瞬态饱和吸收信号的贡献大小, 说明了静态屏蔽效应对空穴-LO 光学声子散射的作用, 并把理论模型与实验数据进行比较, 得出有关空穴热弛豫速率和光学形变势的新的信息.

1 n -GaAs 中的光生空穴对瞬态饱和吸收谱的贡献

n 型重掺杂 GaAs 的能级图和光激发载流子跃迁的情况示于图 1.

其中 $\hbar\omega$ 表示激发和探测光子能量. 掺杂注入的电子处于热平衡, 满足费米分布. 对于光

^{*} 基金项目: 国家自然科学基金 (69676015) 资助项目; 广东省自然科学基金 (19874082) 资助项目

收稿日期: 1999-02-09 作者简介: 张海潮, 男, 1963 年生, 讲师, 博士生.

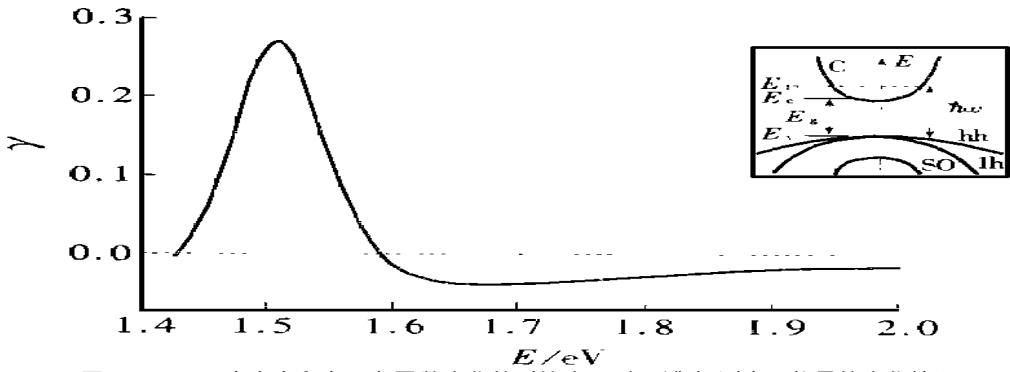


图 1 Si-GaAs 中空穴和电子布居数变化的对比率 γ 随泵浦-探测光子能量的变化情况

Fig. 1 The relative ratio of the differential distributions of heavy holes and electrons in *n*-doped GaAs

掺杂浓度 $n = 2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$; 光生载流子浓度 $N = 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$

注入的电子和空穴，可假定在初始时刻它们在波矢 k 空间的分布是高斯型的。因为在半导体的直接吸收过程中，光激发的跃迁只有对价带和导带的同样的波矢才是允许的，所以，在泵浦探测实验中，光生空穴和光生电子一样也对瞬态饱和吸收谱起着“饱和”作用。尽管有限带宽的激光脉冲所产生的电子和空穴在波矢空间的初始分布宽度相同，但由于电子的有效质量比空穴的有效质量小得多，所以初始的光生电子的能量分布宽度就比初始的光生空穴的能量分布宽度大得多。但是，在这 2 个能量宽度中包含着同样多的状态数目。因此，并不会因为空穴的态密度比电子的态密度大而削弱空穴对饱和吸收谱的贡献。事实上，相应于带填充效应的饱和吸收系数就是正比于电子布居数和空穴布居数之和^[3]：

$$\alpha = \sum_v \alpha_0 C_v(\hbar\omega, \rho) \sqrt{\hbar\omega - E_g(\rho)} [1 - f_c(k) - f_v(k)] \quad (1)$$

其中， α_0 是未受激发时 ($\hbar\omega, \rho = 0$) 的带间吸收， $E_g(\rho)$ 是存在浓度为 ρ 的电子-空穴等离子体时的带隙能量， $C_v(\hbar\omega, \rho)$ 是跃迁能量为 $\hbar\omega$ 时的库仑增强因子， $f_c(k)$ 和 $f_v(k)$ 分别是波矢为 k 的电子与空穴探测态的分布函数。可以看出，吸收饱和信号取决于载流子分布函数之和，故电子和空穴带填充均对吸收饱和有贡献。因此，如果通过选择实验条件，抑制电子或空穴的影响，就可以使得空穴或者电子对饱和吸收信号起主导作用。例如，通过对 GaAs 重掺杂 Si 就可使费米面进入导带之中，以便抑制近费米面附近光激发电子的弛豫过程对泵浦探测信号的贡献，而突出空穴弛豫在饱和吸收谱中的主导地位。根据泵浦探测原理，探测光在某波矢位置测量到的非平衡饱和吸收信号的强弱可以由初始时在该处的布居数与热平衡时布居数之差表征。我们引入布居数变化 Δf_i ，它是指在初始时刻的分布函数与热平衡后分布函数之差， $i = c, v$ 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 $\gamma = \frac{\Delta f_v - \Delta f_c}{\Delta f_v + \Delta f_c}$ 。

图 1 示出 *n* 型掺杂 GaAs 中，掺杂浓度 $n = 2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ，激发光生载流子浓度 $n = 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 时， γ 随泵浦-探测光子能量的变化情况。当 $\gamma < 0$ 时，电子的弛豫在饱和吸收谱中占优；当 $\gamma > 0$ 时，空穴的弛豫在饱和吸收谱中占优。可看到当激发光子能量为 1.52 eV 处（电子过剩能量比费米面约高出约 20 meV），空穴的贡献最大，这时电子的贡献受到遏制。于是，在 1.52 eV 附近探测到的信号主要是空穴弛豫的信息，而当光子能量增加至大于 1.60 eV 时，电子的贡献略占优，这一点在低温时尤其明显。

2 空穴-光学声子散射

由载流子散射决定的空穴和电子的初始散射过程很快 (约在几十飞秒), 我们着眼于较慢的空穴热化过程, 约在亚皮秒量级. 一般说来, 空穴的热化过程主要由空穴与 LO 及 TO 光学声子的散射决定^[7,8]. 空穴与光学声子的散射有两种类型, 即空穴-极性光学声子 (LO 声子) 散射和空穴-非极性光学声子 (LO 与 TO 声子) 散射.

在屏蔽条件下, 我们导出空穴对极性光学声子的吸收率和发射率公式为

$$S_{h,po}^- = \frac{e^2 \omega_{LO} m_v}{4\pi \epsilon_0 \hbar^2 k_i} \left[\frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_s} \right] \left\{ \frac{N_0}{N_0 + 1} \right\} \frac{\Xi}{8} \quad (2)$$

N_0 为 LO 声子占有数, N_0 和 $N_0 + 1$ 分别对应吸收和发射. Ξ 由下式定义

$$\begin{aligned} \Xi = & \frac{3}{8k_i^2 k_f^2} \left[\frac{(k_f + k_i)^6}{(k_f + k_i)^2 + q_D^2} - \frac{(k_f - k_i)^6}{(k_f - k_i)^2 + q_D^2} \right] - \frac{6(k_i^2 + k_f^2 + 3q_D^2/4)}{k_i k_f} + \\ & \left[1 + \frac{3}{4} \frac{(k_f + k_i)^2}{k_i^2 k_f^2} + \frac{3}{2} \frac{k_i^2 + k_f^2 + 3q_D^2/4}{k_i^2 k_f^2} \cdot q_D^2 \right] \cdot \left[\frac{q_D^2}{(k_f + k_i)^2 + q_D^2} - \frac{q_D^2}{(k_f - k_i)^2 + q_D^2} \right] + \\ & \left[1 + \frac{3}{4} \frac{(k_f + k_i)^2}{k_i^2 k_f^2} + 3 \frac{q_D^2}{k_i^2 k_f^2} \left(k_i^2 + k_f^2 + \frac{3}{4} q_D^2 \right) \right] \ln \left[\frac{(k_f + k_i)^2 + q_D^2}{(k_f - k_i)^2 + q_D^2} \right] \end{aligned} \quad (3)$$

其中, q_D 为德拜屏蔽波矢, k_i 为空穴的初始波矢, k_f 为吸收或发射频率为 ω_{LO} 的 LO 声子后的末态波矢, 且 $k_f = \left[k_i^2 \pm \frac{2m_v \omega_{LO}}{\hbar} \right]^{1/2}$, $\pm$ 分别对应吸收和放出光学声子. 这里的德拜屏蔽波矢 q_D 有 2 个来源: $q_D^2 = q_1^2 + q_2^2$, 其中, q_1 对应于光注入载流子所形成的屏蔽, 当激发光频宽 $\Delta\omega$ 较窄时, 经计算有

$$q_1^2 = \frac{e^2 N (m_c + m_v)}{\epsilon_0 \epsilon_{(\infty)} \hbar^2 k_i^2} \quad (4)$$

N 为光激发浓度, ϵ_0 和 $\epsilon_{(\infty)}$ 分别为真空介电常数和半导体的高频介电常数. 而由掺杂注入的电子所对应的德拜屏蔽波矢 q_2 的形式稍微复杂一些, 经推导它可表示为

$$q_2^2 = \frac{e^2}{\epsilon_{(\infty)} \epsilon_0} \frac{\partial n}{\partial (E_{fc} - E_c)} \quad (5)$$

E_{fc} 和 E_c 分别是费米能和导带底能量, n 是掺杂载流子浓度.

空穴-非极性光学声子的散射率公式比较简单, 不必考虑屏蔽效应, 它可写为

$$S_{h,np}^- = \frac{3d_0^2 m_v k_f}{4\pi \hbar^2 a_0^2 \rho \omega_0} \left\{ \frac{N_0}{N_0 + 1} \right\} \quad (6)$$

其中, a_0 是半导体的晶格常数, ρ 是半导体的质量密度, N_0 为光学声子占有数, N_0 和 $N_0 + 1$ 分别对应吸收和发射光学声子, d_0 表示光学形变势, k_f 的定义和上述的相似. 此式与文献 [8] 中引用的公式 (5) 在形式上不同, 在这里我们采用了人们习惯的光学形变势常数 d_0 以及波矢 k_f 表示该公式, 但本质上是一致的. 图 2 为 n -GaAs 中空穴和极性光学声子与非极性光学声子散射时间随空穴过剩能量变化的计算曲线.

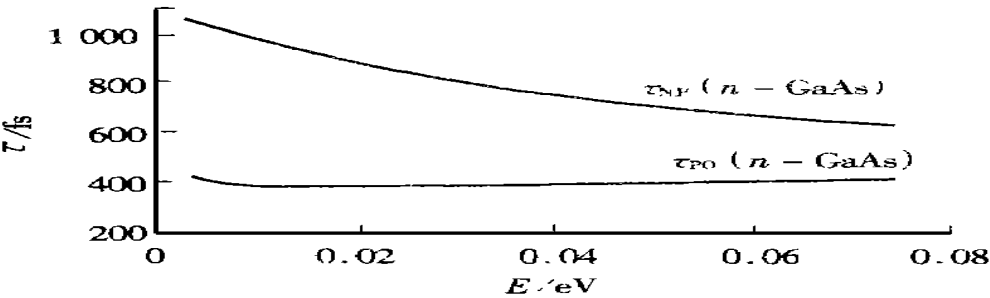


图 2 Si-GaAs 中空穴和极性光学声子与非极性光学声子散射时间随空穴过超能量变化的计算曲线
Fig. 2 The calculated heavy hole-optical phonon scattering times versus the excess energies of heavy holes

3 实验结果分析与结论

在室温下对掺杂浓度为 $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 Si-GaAs 样品进行了泵浦探测实验. 选择泵浦-探测光子能量为 1.52 eV, 脉冲宽度为 60 fs, 激发浓度为 $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, 相应的 Si-GaAs 的飞秒饱和和吸收曲线示于图 3 曲线(a). 曲线(b)为本征 GaAs (*i*-GaAs)的相应实验曲线, 以作对比. 所有曲线均已扣除相干耦合假象的影响. 可以看出, *i*-GaAs 的曲线显示出一个飞秒量级的初始散射过程, 即非平衡载流子通过载流子间散射(电子-电子、电子-空穴、空穴-空穴)和载流子-光声子散射等各种散射过程从受激态过渡到准平衡态过程; 一个皮秒量级的热弛豫过程, 即由准平衡态的载流子通过载流子-光声子互作用与晶格交换能量, 达到热平衡的过程; 和一个纳秒级的电子-空穴复合过程(图 3 虚线所示成分). 然而, Si-GaAs 的实验曲线中, 对应于受激载流子的初始散射过程的成分很低, 几乎观察不到, 只观测到较慢的热弛豫过程和复合过程. 拟合结果表明热弛豫时间约为 300 fs.

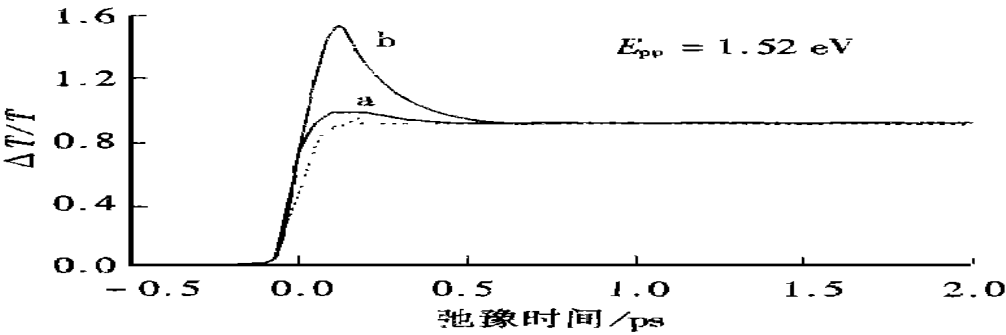


图 3 室温下 Si-GaAs(a)和 *i*-GaAs(b)的飞秒饱和和吸收曲线
Fig. 3 Femtosecond absorption saturation traces of Si-GaAs (a) and *i*-GaAs(b)

由于在 Si-GaAs 中光激发重空穴的能量较小 ($\sim 16 \text{ meV}$), 远小于室温下的平均能量 ($\sim 3/2 k_B T_L = 39 \text{ meV}$), 所以测量信号中较慢的热弛豫过程实际上反映的是空穴从晶格那里获得能量的热化过程, 表现为吸收声子. 测量到的热化时间取决于空穴吸收极性和非极性声子的时间 T_{PO} 和 T_{NP} : $T_{th} = (1/T_{PO} + 1/T_{NP})^{-1}$, 由图 2 可计得 $T_{th} = 303 \text{ fs}$, 与实验值 300 fs 吻合. 由此实验值算出 *n*-型重掺杂 GaAs 的光学形变势常数 d_0 约为 31 eV, 这一取值与文献 [4] 对 *n*-型重掺杂 GaAs 的 d_0 的估计值 (25^{+10}_{-5} eV) 一致.

本文在理论和实验上研究了 Si-GaAs 在室温下近费米面激发时重空穴的超快弛豫特性, 结果表明此时测量到的吸收饱和信号中的亚皮秒级的成分反映的主要是重空穴吸收光学声子的热化过程, 其热化时间 ~ 300 fs, 理论计算值与实验值很好符合, 由此所导出的材料光学形变势常数 $d_0 = 31$ eV. 此值和已报导的 Si-GaAs 中的估计值一致, 但比本征 GaAs 中 d_0 ($d_0 \sim 41$ eV^[3]) 小, 这可能反映了掺杂物对空穴与光学声子互作用的影响.

参考文献:

- [1] TALOR A J, ERSKINE D J, TANG C L. Ultrafast relaxation dynamics of photoexcited carriers in GaAs and related compounds [J] . J Opt Soc Am, 1985, B2 (4): 663.
- [2] LIN W Z, SCHOENLEIN R W, FUJIMOTO J G, et al. Femtosecond absorption saturation of hot carriers in GaAs and AlGaAs [J] . IEEE JOE, 1988, 24: 267~275.
- [3] LEITENSTORFER A, FURST C, LAUBEREAU A, et al. Femtosecond carrier dynamics in GaAs far from equilibrium [J] . Phys Rev Lett, 1996, 76: 1545~1548.
- [4] ZHOU X Q, LEO K, KURZ H. Ultrafast relaxation of photoexcited holes in n -doped III-V compounds studied by femtosecond luminescence [J] . Phys Rev (B), 1992, 45: 3886~3889.
- [5] FATTI N D, TOMMASI P, VALLEE F. Ultrafast hole-phonon interactions in GaAs [J] . Appl Phys Lett, 1997, 71: 75~77.
- [6] GANIKHANOV F, BURR K G, TANG C L. Ultrafast dynamics of holes in GaAs probed by two-color femtosecond spectroscopy [J] . Appl Phys Lett, 1998, 73: 64~66.
- [7] COLLET J H. Screening and exchange in the theory of the femtosecond kinetics of the electron-hole plasma [J] . Phys Rev (B), 1993, B47: 10279~10291.
- [8] BRUDEVOLL T, FJELDLY T A, BAEK J, et al. Scattering rates for holes near the valence-band edge in semiconductors [J] . J Appl Phys, 1990, 67: 7373~7382.

Ultrafast Dynamics of Electrons and Holes in Highly n -doped GaAs

ZHANG Hai-chao^{*}, HUANG Chun, WEN Jin-hui, LAI Tian-shu, LIN Wei-zhu

Abstract: The ultrafast dynamics of photoexcited electrons and holes in highly n -doped GaAs are studied theoretically and experimentally. The contributions of the electrons to the absorption saturation signal are reduced due to the screening of the electron Fermi distribution in the conduction band of n -GaAs. The effects of the holes are then enhanced. A heavy hole-optical phonon scattering time of 303 fs is calculated and an optical deformation potential $d_0 = 31$ eV is deduced. The calculated values are in consistent with those measured in the experiments.

Keywords: femtosecond spectroscopy; n -GaAs; hole-phonon scattering

^{*} State Key Laboratory of Ultrafast Laser Spectroscopy, Zhongshan University, Guangzhou 510275, China