

# CaAs 中光生重空穴的空穴—空穴散射\*

张海潮 文锦辉 郭 冰 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)

(1999 年 8 月 11 日收到;1999 年 10 月 18 日收到修改稿)

讨论了高斯型载流子分布的静态屏蔽效应及其对空穴—空穴散射率的影响,说明随着空穴初始动能的减小,载流子分布的静态屏蔽效应和散射前后空穴波函数的重叠积分导致散射率迅速减小.重叠积分对空穴—空穴散射率带来的修正因子的下限约为 0.3,上限为 1,均大于先前报道的修正因子 0.1.理论计算与实验测量结果符合.

PACC: 7847; 7855

## 1 引 言

近年来,半导体 GaAs 中空穴的弛豫特性已成为研究的热点之一<sup>[1-7]</sup>,这是因为人们过去对导带中电子的弛豫特性了解较多,而对空穴的认识却较少.因此,研究空穴的弛豫特性不仅对理解其基本的物理过程,而且对研制快速光电装置都具有很重要的意义.最近,Ganikhanov 等人<sup>[1]</sup>采用飞秒脉冲光激发 GaAs,在价带中产生空穴,并探测空穴从重空穴(HH)及轻空穴(LH)价带到自旋分裂带(SO)的跃迁,直接测量到 GaAs 空穴的散射时间小于 75fs,表明空穴—空穴散射速率很大.这一实验结果与 Collet 等人理论计算的空穴—空穴散射率<sup>[6,8]</sup>相比,有较大差异.后者认为,由于价带类  $p$  波函数的各向异性,包含重叠积分  $C_{vv}$ (它表示散射前后状态波函数的交叠)的散射率仅是未考虑  $C_{vv}$ (亦即  $C_{vv}=1$  时)散射率的十分之一.也就是说, $C_{vv}$ 对散射率带来的修正因子为 0.1.这个 0.1 修正因子甚至被其他文献外推到电子—空穴散射率的计算上<sup>[8]</sup>.另外,先前的一些研究在考虑屏蔽效应时,采用了载流子的准平衡分布<sup>[10,11]</sup>.由于载流子的初始布居偏离平衡态,用高斯分布描写其分布应该更为恰当.因此研究重叠积分  $C_{vv}$ 和高斯分布对空穴—空穴散射率的影响,在实验上和理论上都有重要意义.本文证明,当载流子的初始分布为高斯型时, $C_{vv}$ 对散射率的修正与空穴的动能有关:空穴动能越小, $C_{vv}$ 引起的修正越显著.修正因子的下限约为 0.3,上限为 1,均大

于文献的修正因子 0.1.我们的计算与实验测量值符合较好,亦能解释 Ganikhanov 等人<sup>[1]</sup>的实验结果.

## 2 光生重空穴的空穴—空穴散射

在半导体 GaAs 中价带的受激空穴和导带中的受激电子一样,会通过各种散射途径离开激发态而达到一种准平衡状态.这一过程称为初始散射过程,如图 1 所示.为简单起见,本文仅讨论重空穴(HH)带中的散射过程.HH 与声学声子交换的能量很小,属于弹性散射,一般不需考虑.电子和 LH 的有效质量比 HH 的小很多,所以它们对 HH 的散射率远远

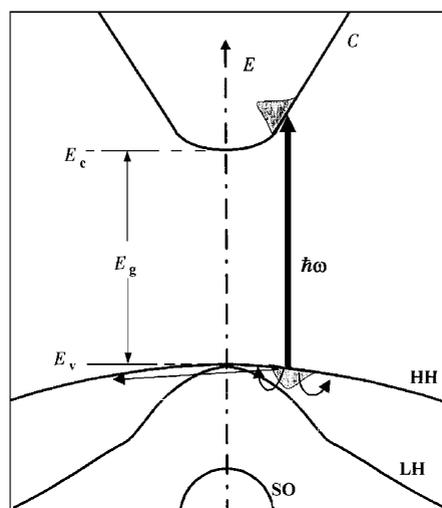


图 1 GaAs 的能带图  $E_c$  和  $E_v$  分别为导带底和价带顶能量, $E_g$  为禁带宽度, $h\omega$  为抽运探测光子的能量

\* 国家自然科学基金(批准号 69676015 和 19874082)资助的课题.

小于重空穴(HH)之间的散射率(以下简称空穴—空穴散射率).因此HH的初始散射过程主要由空穴—空穴散射以及空穴吸收或发射光学声子的散射决定.空穴与光学声子散射的详细讨论见文献[3,5],这里不再赘述.光生HH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(在GaAs中,这一能量约为70 meV),所以,对空穴—空穴散射率的计算可采用静态屏蔽近似,并可由下式表示<sup>[6]</sup>:

$$S_{\text{v}}^-(k) = 2 \sum_q [1 - f_v(k - q)] C_{\text{vv}}(k, k - q) \cdot \sum_{k'} f_v(k') [1 - f_v(k' + q)] C_{\text{vv}}(k', k' + q) \times \frac{2\pi}{\hbar} \times \left| \frac{V_v(q)}{\epsilon(q)} \right|^2 [\delta(E_v(k) + E_v(k') - E_v(k - q) - E_v(k' + q))] \quad (1)$$

此式描写了处于状态 $k$ 的空穴被所有状态 $k'$ 的空穴碰撞后脱离初始状态 $k$ 的速率.碰撞前,空穴的能量分别为 $E_v(k)$ 和 $E_v(k')$ ,碰撞后的能量分别为 $E_v(k - q)$ 和 $E_v(k' + q)$ .其中, $q$ 是散射过程中交换波矢 $q$ 的大小, $f_v(k)$ 是空穴在状态 $k$ 的布居( $1 - f(k - q)$ )因子的出现是由于泡利不相容原理, $\delta$ 函数保证了能量守恒.因子 $C_{\text{vv}}(k, k - q)$ 和 $C_{\text{vv}}(k', k' + q)$ 是散射过程中所涉及的初态和末态Bloch函数的周期性部分在元胞内的重叠积分(简记做 $C_{\text{vv}}$ ),它来源于价带的类 $|p\rangle$ 波函数的各向异性,将导致散射率降低. $V_v(q)$ 是库仑势的傅里叶变换, $\epsilon(q)$ 为静态介电常数,

$$\epsilon(q) = 1 + \frac{q_D^2}{q^2}, \quad (2)$$

$q_D$ 是Debye-Hückel屏蔽波矢,由下式决定,

$$q_D^2 = - \frac{e^2}{\epsilon_0 \epsilon(\infty)} \sum_i \frac{df(E_i)}{dE_i}, \quad (3)$$

其中, $\epsilon_0$ 和 $\epsilon(\infty)$ 分别为真空介电常数和半导体的高频介电常数.由于垂直跃迁,光注入电子和空穴在波矢空间具有相同的初始分布,假定是高斯型,

$$f(k) = \frac{\pi^{\frac{3}{2}} N}{\sigma k_0^3} \exp\left(-\frac{(k - k_0)^2}{\sigma^2}\right), \quad (4)$$

其中, $N$ 为光激发浓度, $k_0$ 是电子和空穴单粒子分布的中心波矢, $\sigma$ 为分布宽度.根据(3)式和(4)式,可算得光注入载流子的Debye-Hückel屏蔽波矢,

$$q_D^2 = \frac{e^2 N (m_c + m_v)}{\epsilon_0 \epsilon(\infty) \hbar^2 k_0^2}, \quad (5)$$

$m_c$ 和 $m_v$ 分别是电子和空穴的有效质量.显然可得

出这样的结论:对光注入载流子,空穴引起的屏蔽效应比较显著,屏蔽效应随载流子动能的减少而增加.

推导散射率公式时,首先要确定积分区域.Collet等人在计算载流子散射率中采用能量表象,未能避免一些繁杂计算,甚至在简单情况下也很难得到解析公式.本文采用波矢 $k$ 空间运算,能得到包含 $C_{\text{vv}}$ 的空穴—空穴散射率的解析表达式.设 $\theta$ 和 $\theta'$ 分别是 $q$ 与 $k$ 和 $k'$ 的夹角,则有

$$\delta[E_v(k) + E_v(k') - E_v(k - q) - E_v(k' + q)] = \frac{m_v}{k' q \hbar^2} \delta\left(\cos\theta' - \frac{k \cos\theta - q}{k'}\right). \quad (6)$$

确定 $k'$ 空间球坐标的 $\cos\theta'$ 使其成为 $q$ 空间的 $\cos\theta$ 的函数.对 $k'$ 积分时取高斯分布的 $\delta$ 函数极限形式.为使计算简化,注意到散射在光注入载流子间进行,可先令散射前波矢的绝对值 $k' = k$ ,由此确定得 $\cos\theta$ 的积分域为 $-1 + q/k \leq \cos\theta \leq 1$ ,同时确定 $q$ 的积分域为 $0 < q < 2k$ .至于 $k' \neq k$ 情形,也很容易根据(6)式得到推广.对我们感兴趣的高斯分布范围,验证的结果是,具有波矢大小 $k' \neq k$ 的空穴对散射率的修正很小.

在能带的 $\Gamma$ 点附近,重叠积分 $C_{\text{vv}}(k, k - q) = (1 + 3\cos^2 k, k - q) \mathcal{V}^{\frac{1}{3}}$ <sup>[6]</sup>.为便于积分,需把它表示成 $\cos\theta$ 的函数,

$$\cos^2 k, k - q = \frac{(k \cdot (k - q))^2}{k^2 (k - q)^2} = \frac{(k^2 - kq \cos\theta)^2}{k^2 (k^2 - 2kq \cos\theta + q^2)}. \quad (7)$$

类似地,把 $C_{\text{vv}}(k', k' + q)$ 表示成 $\cos\theta'$ 的函数. $\cos\theta'$ 和 $\cos\theta$ 通过(6)式联系.这样可把 $S_{\text{v}}^-(k_0, N)$ 的表达式中极其繁杂的多重积分用数值解作近似处理.舍弃量级很小的项,并考虑到空穴是全同粒子,对于自旋相同的空穴间的散射,末态粒子的交换与否对散射过程只贡献一次,应当对 $S_{\text{v}}^-(k_0, N)$ 的表达式乘以统计权重因子 $3/4$ .最后得到下面简明的表达式,

$$S_{\text{v}}^-(k_0, N) = \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{3\pi N m_v}{\epsilon_c^2 \hbar^3 k_0 q_D^2} \cdot \left(1 - \frac{q_D}{16k_0} \left(-\frac{k_0}{q_D} + 15 \arctan\left(\frac{k_0}{q_D}\right) + \arctan\left(\frac{2k_0}{q_D}\right)\right)\right). \quad (8)$$

当 $C_{\text{vv}} = 1$ 时,上式变为

$$S_{\text{v}}^-(k_0, N) = \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{3\pi N m_v}{\epsilon_c^2 \hbar^3 k_0 q_D^2}$$

$$\cdot \left( 1 - \frac{q_D}{2k_0} \arctan\left(\frac{2k_0}{q_D}\right) \right), \quad (9)$$

其中,  $N$  为光激发浓度,  $k_0$  是光激发载流子的中心波矢,  $\epsilon_{(0)}$  为半导体的低频介电常数, 它隐含于库仑势的傅里叶变换  $V(q)$  之中.

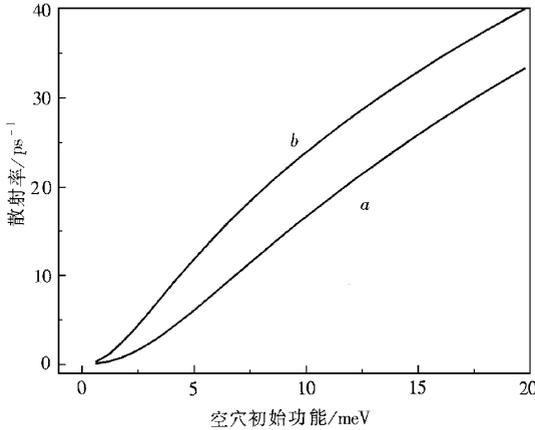


图 2 (a) 包含  $C_{vv}$  的空穴—空穴散射率随空穴初始动能变化的理论曲线 (b)  $C_{vv} = 1$  的空穴—空穴散射率随空穴初始动能变化的理论曲线. 光生载流子浓度  $N = 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$

图 2(a) 和 (b) 分别是考虑和不考虑  $C_{vv}$  引起的修正时的空穴—空穴散射率与空穴初始动能的关系曲线. 我们看到, 空穴动能越大, 即波矢  $k$  越大, 散射速率越大. 这种趋势与文献 [11] 的图 2(其中  $C_{vv} = 1$ ) 不同. 其本质差别在于, 文献 [11] 假定了对各种初始动能的载流子散射都可采用同一个确定的 Debye-Hückel 屏蔽波矢, 并简单地假定载流子分布为玻耳兹曼分布. 其结果是, 对低动能的载流子散射低估了屏蔽效应, 对高动能的载流子散射则高估了屏蔽效应. 同时, 对于初始散射, 偏离准平衡态的载流子分布并非玻耳兹曼分布, 这已经为实验所证实 [17], 用高斯分布代替玻耳兹曼分布比较接近实际情况.

我们把包含  $C_{vv}$  的空穴—空穴散射率与  $C_{vv} = 1$  的空穴—空穴散射率的比值, 称为修正因子  $\beta$ , 它与空穴初始动能的关系曲线 (载流子的浓度取  $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ) 如图 3 所示. 可以看到, 随着空穴动能的减小,  $C_{vv}$  带来的修正的差异越来越显著.

但是  $C_{vv}$  对散射率的修正并不像文献 [6] 预示的修正因子是 1/10 那样显著. 这是因为, 比起载流子与极性光学声子的 Fröhlich 相互作用的跃迁矩阵元来说, 载流子之间的 Coulomb 相互作用的跃迁矩阵元 (比 Fröhlich 相互作用多了一个  $1/q$  的因子) 更

有利于小波矢交换. 因此, 散射后的载流子波矢的方向有接近初始波矢的倾向, 即跃迁矩阵元对  $C_{vv}$  接近 1 的散射过程更为有利, 从而造成  $C_{vv}$  带来的修正并不特别地显著. 但对于较小的初始波矢, 小波矢交换也可引起较大的散射角. 因此, 随着空穴初始波矢的减小,  $C_{vv}$  带来的修正越来越明显. 修正因子的下限约为 0.3 (见图 3).

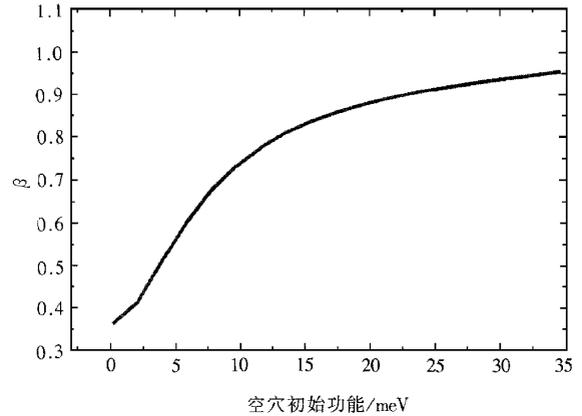


图 3 包含  $C_{vv}$  的空穴—空穴散射率与  $C_{vv} = 1$  的散射率之比, 即修正因子  $\beta$  随空穴初始动能变化的计算曲线. 光生载流子浓度  $N = 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$

### 3 重空穴散射速率的测量

实验上测量重空穴散射速率的困难之处是如何区分空穴和电子对瞬态光谱测量信号的贡献. 我们在下面说明, 采用可调谐飞秒脉冲, 能选择性地激发重空穴, 并分析其散射特性.

根据抽运探测瞬态饱和和吸收原理, 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  $\Delta f_i$  表示这一布居数变化,  $i = c, v$  分别代表导带电子和价带空穴. 图 4 是本征 GaAs 在室温下  $\Delta f_i$  随抽运—探测光子能量的变化曲线 (激发浓度为  $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , 带隙能量  $E_g$  取  $1.424 \text{ eV}$ ). 我们看到, 对于本征 GaAs, 抽运—探测光子的能量在  $1.45 \text{ eV}$  附近时, 电子的布居数变化  $\Delta f_c$  最小, 从而突出了空穴的布居数变化  $\Delta f_v$ . 因此, 这时的饱和吸收光谱主要决定于空穴的弛豫. 光生轻空穴 LH 数目比重空穴 HH 少一半以上 [4], 因此可以认为抽运—探测信号主要由光生重空穴 HH 的弛豫决定. HH 的初始动能为  $8 \text{ meV}$ , 图 4 曲线取载流子的初始分布为本文

(4) 式所示的高斯分布, 激光脉宽为 60 fs. 载流子的热平衡分布取室温下的费密分布, 电子和空穴的化学势采用了 Nilsson 近似<sup>[12]</sup>.

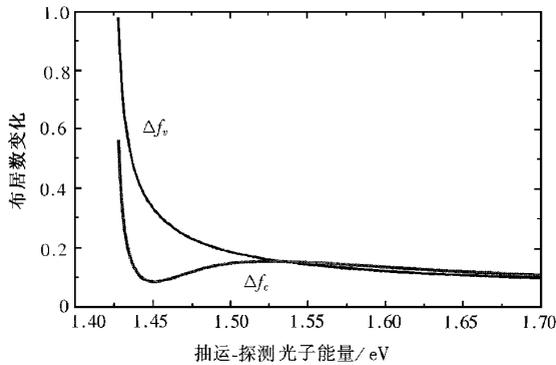


图 4 i-GaAs 中, 空穴(电子)的布居数变化  $\Delta f_e$  ( $\Delta f_h$ ) 随抽运—探测光子能量的变化曲线. 光生载流子浓度  $N = 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$

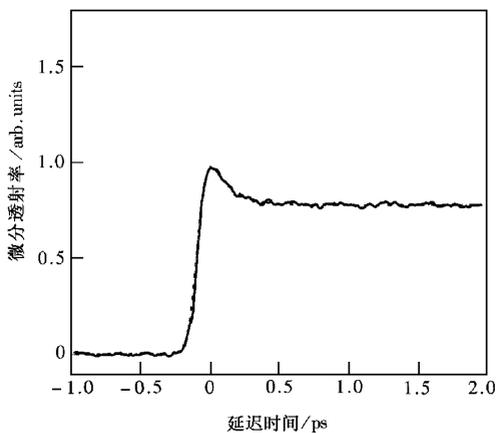


图 5 室温下 i-GaAs 的飞秒饱和和吸收实验曲线, 虚线是拟合曲线. 抽运—探测光子能量为 1.452 eV. 脉冲宽度为 60 fs. 光生载流子浓度  $N = 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$

图 5 是抽运—探测光波长为 854 nm (即光子能量为 1.45 eV) 时 i-GaAs 的飞秒饱和和吸收实验曲线, 点线是拟合曲线. 实验曲线已扣除相干耦合假像. 拟合曲线是抽运—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<sup>[13]</sup>. 从实验曲线拟合得到 GaAs 样品的初始散射时间约为 150 fs. 这一时间过程主要包含了光生 HH—HH 的散射过程和 HH—光学声子散射过程. 由文献 [1] 可计得 HH—光学声子的散射率为  $3.6 \text{ ps}^{-1}$ ; 由(8) 式或图 2 曲线 a 可计得 HH 的空穴—空穴散射率为  $2.85 \text{ ps}^{-1}$ , 由此可得 HH 总的初始散射速率  $6.45 \text{ ps}^{-1}$ , 即初始散射时间约为 155 fs, 与实验

结果 150 fs 较为符合.

对 Ganikhanov 等人<sup>[1]</sup>的测量参数, 即光生空穴的浓度为  $2.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 、激发脉冲的中心波长为 815 nm (相当于 HH 的初始动能为  $12 \text{ meV}^{[1]}$ ), 考虑到 LH 浓度约为 HH 的一半<sup>[9, 15]</sup>, 由(8) 式或图 2 曲线 a 计算得到 HH 的空穴—空穴散射速率约为  $19 \text{ ps}^{-1}$ , HH 总的初始散射速率应为  $22.6 \text{ ps}^{-1}$ , 即初始散射时间为 44 fs, 与其测量结果比较接近 (该文献从实验曲线中估算 HH 的初始散射时间小于 75 fs, 即初始散射速率大于  $14 \text{ ps}^{-1}$ ). 但该文理论分析是采用文献 [11] 中  $C_{vv} = 1$  的散射率作了粗略的估计, 所得空穴—空穴散射速率为  $25 \text{ ps}^{-1}$ . 此数值与测量结果偏离较大, 但如前所述, 文献 [11] 并未考虑  $C_{vv}$  的影响, 且采用了一个欠妥的 Debye-Hückel 屏蔽波矢, 使计算结果偏高. 再者, 若采用文献 [6, 8] 的 1/10 修正因子, 则计算的空穴—空穴散射速率应该为  $2.5 \text{ ps}^{-1}$ , 总的初始散射速率为  $6.1 \text{ ps}^{-1}$ , 这显然小于实验测量值的下限.

## 4 结 论

我们讨论了高斯型载流子分布的静态屏蔽效应以及对应的空穴—空穴散射率, 考察了重叠积分  $C_{vv}$  对空穴—空穴散射率的修正. 高斯型载流子分布的静态屏蔽效应和  $C_{vv}$  皆使得空穴—空穴散射率随着空穴初始动能的减小而迅速减小.  $C_{vv}$  对空穴—空穴散射率带来的修正并不像文献 [6] 估计的那样显著——修正因子约为 1/10, 而是随着空穴动能的增加越来越趋于 1 (见图 3). 当空穴能量很低时,  $C_{vv}$  对散射率的修正十分显著, 修正因子的下限约为 0.3.

- [1] F. Ganikhanov, K. C. Burr, C. L. Tang, *Appl. Phys. Lett.*, **73** (1998) 64.
- [2] P. Langot, R. Tommasi, F. Vallee, *Phys. Rev.*, **B54** (1996), 1775.
- [3] R. Scholz, *J. Appl. Phys.*, **77** (1995) 3219.
- [4] N. Del Fatti, P. Langot, R. Tommasi et al., *Appl. Phys. Lett.*, **71** (1997), 75.
- [5] T. Brudevoll, T. A. Fjeldly, J. Baek et al., *J. Appl. Phys.*, **67** (1990) 7373.
- [6] J. H. Collet, *Phys. Rev.*, **B47** (1993) 10279.
- [7] W. Z. Lin, R. W. Schoenlein, J. G. Fujimoto et al., *IEEE JQE*, **24** (1988) 267.
- [8] D. W. Snoko, *Phys. Rev.*, **B47** (1993) 13346.
- [9] J. D. Wiley, *Phys. Rev.*, **B4** (1971) 2485.

- [ 10 ] R. Binder ,D. Scott ,A. E. Paul *et al.* ,*Phy. Rev.* **B45**( 1992 ) , 1107.      [ 12 ] B. R. Bennett *et al.* ,*IEEE JQE* **26**( 1990 ) ,113.
- [ 11 ] M. A. Oxman ,D. K. Ferry ,*Phys. Rev.* **B36**( 1987 ) 6018.      [ 13 ] Weizhu Lin ,Jinhui Wen *et. al.* ,*Ultrafast Phenomena* ,**XI** ( 1998 ) 286.

## HOLE-HOLE SCATTERING OF PHOTOEXCITED HEAVY-HOLES IN GaAs<sup>\*</sup>

ZHANG HAI-CHAO WEN JIN-HUI GUO BING LAI TIAN-SHU LIN WEI-ZHU

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

( Received 11 August 1999 ; revised manuscript received 18 October 1999 )

### ABSTRACT

The heavy-hole—heavy-hole scattering in GaAs has been investigated by taking into account the static screening of the excited carrier Gaussian distribution. It has been shown that the scattering rate decreases strongly with the decrease of the initial energy of heavy holes. This can be attributed to the effects of static screening and the overlap of the  $|p\rangle$  like wave functions of excited carriers. The overlap of the  $|p\rangle$  like wave functions reduces the scattering rate by a factor of 3 for the low heavy-hole energy. The theoretical predictions are in good agreement with the experimental results.

PACC : 7847 ,7855

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 69676015 ).