

长寿命吸收过程对超快动力学过程测量的影响*

王文芳 陈科 邬静达 文锦辉 赖天树†

(中山大学光电材料与技术国家重点实验室,物理科学与工程技术学院,广州 510275)

(2011年1月17日收到;2011年2月24日收到修改稿)

使用飞秒时间分辨抽运-探测透射光谱技术,实验研究了 GaAs 体材料中光激发载流子的超快弛豫动力学的波长依赖. 在相同的光激发载流子浓度和抽运/探测比时,发现 760 nm 和 780 nm 两中心波长处的瞬态透射变化延迟扫描信号出现负的和振荡的信号. 与模拟计算结果对比,判定该实验瞬态信号是错误的. 分析探测器输出波形,发现是由于反相波形导致的,而引起反相波形的原因在于样品中存在长寿命的吸收过程. 指出通过提高探测器上的抽运/探测比能够矫正反相波形,从而获得正确的瞬态透射变化动力学. 提高探测器上的抽运/探测比与目前的应尽量减小抽运光对探测器的散射贡献的观点是对立的. 文章的研究结果对应用抽运-探测时间分辨光谱技术正确地测量超快瞬态动力学过程具有重要的参考价值.

关键词: 时间分辨抽运-探测透射光谱, 饱和吸收, 吸收增强, GaAs 体材料

PACS: 78.47.J-, 78.20.Ci, 78.66.Fd

1. 引言

抽运-探测时间分辨光谱技术是目前实验研究超快现象与超快过程的重要手段之一,被广泛应用于半导体中超快载流子^[1]和自旋动力学^[2-4]以及铁磁薄膜中超快退磁甚至磁化反转^[5,6]动力学研究. 因而,获取正确的超快时间分辨瞬态信号就成为正确认识超快过程的前提. 怎样才能采集到正确的时间分辨瞬态信号呢? 至今还没有深入的研究报道给出获取正确的时间分辨瞬态信号的基本判据,而只有一些基本的共识,即尽量使用高的抽运/探测比和尽量多地滤除探测器上的抽运散射光. 然而,这样的共识并不是获得正确的时间分辨瞬态信号的充分条件,因为常见到一些文献在遵循了此共识的情况下,报道一些奇怪的振荡实验瞬态信号,物理上无法解释,如文献[1,7]所示. 事实上那些振荡信号可能是错误的,是由于探测器上的抽运/探测比的设置不正确而导致的错误结果. 探测器上的抽运/探测比在目前的抽运-探测时间分辨光谱测量中的确是一个被忽视的因素,通常认为此比值应该越小越好,即抽运散射光越

弱越好. 然而,本文通过对 GaAs 的波长依赖抽运-探测实验结果演示,发现探测器上的抽运/探测比是一个非常重要的参数. 它的值过小会导致错误的时间分辨瞬态信号. 相反,增大此比值,反而能获得正确的时间分辨瞬态信号. 分析指出是由于长寿命吸收过程导致了探测信号相位反转,而增加探测器上的抽运/探测比,正好能够矫正相位反转,从而获得正确的瞬态信号.

2. 实验

钛宝石自锁模激光器产生的脉宽约 60 fs,中心波长在 750—855 nm 范围可调,重复率约 96 MHz 的激光脉冲列,通过一个标准的非共线抽运-探测实验装置,输出强度比为 20:1,偏振平行的抽运与探测光束. 其中探测光通过光学延迟线,实现抽运-探测光脉冲之间的时间延迟控制. 抽运和探测光通过同一个 50 mm 焦距的正透镜聚焦在 0.5 μm 厚的半绝缘 GaAs 薄膜样品上的同一点. 透过样品的探测光强变化由光电二极管和锁相放大器检测.

* 国家自然科学基金(批准号:10874247,61078027)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: stslts@mail.sysu.edu.cn

3. 实验结果及讨论

3.1. 瞬态透射变化的波长依赖

图1中实线所示为室温下、抽运激发载流子浓度恒定约为 $3.75 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 时,测量的本征 GaAs 在 5 个不同中心波长处的瞬态透射变化率的时间延迟扫描曲线. 波长等于和大于 800 nm 时,信号正常,由零点附近的正峰和之后的慢弛豫过程组成. 正峰的贡献来源包括相干假象^[8]、光谱烧孔^[9,10]和载流子热化效应^[11],而其后的慢弛豫反映载流子复合动力学. 随波长缩短,透射变化率减弱,主要是因为高能级上的载流子布居数减少,带填充效应减弱. 然而,780 nm 和 760 nm 波长的透射变化率时间延迟曲线则出现了振荡现象. 在延迟零点前首先出现下凹负信号,然后 780 nm 曲线很快再变回正的饱和吸收信号,经过约 0.7 ps 后再次变为负信号,而 760 nm 曲线经历一个小振荡后,一直保持为负信号. 这样的振荡信号物理上是难于解释的. 正如前面所述的发生在亚皮秒时间尺度的三种效应:相干假象、光谱烧孔和载流子热化的贡献都是产生正信号. 而振荡之后的慢弛豫信号保持为负,原则上可以由带隙重整化效应增强解释^[12-15]. 然而,在目前的抽运激发载流子浓度下,小于 800 nm 波段是否出现带隙重整化效应强于带填充效应,还有待理论计算的确认.

3.2. 线偏振光抽运-探测透射光谱变化率的模拟计算

实验测量的探测光透射变化率正比于样品吸收系数的变化^[9],即

$$\Delta T/T = \frac{I_0 e^{-\alpha d} - I_0 e^{-\alpha_0 d}}{I_0 e^{-\alpha_0 d}} \approx -(\alpha - \alpha_0)d = -\Delta\alpha d. \quad (1)$$

式中 I_0 为探测光的入射光强, d 为样品厚度, α_0 和 α 分别为无和有光激发载流子布居时样品的吸收系数.

无光激发载流子布居时, GaAs 的吸收系数为^[15]

$$\alpha_0(E) = \frac{C_{\text{lh}}}{E} \sqrt{E - E_g} + \frac{C_{\text{lh}}}{E} \sqrt{E - E_g} \quad E \geq E_g, \\ \alpha_0(E) = 0 \quad E < E_g. \quad (2)$$

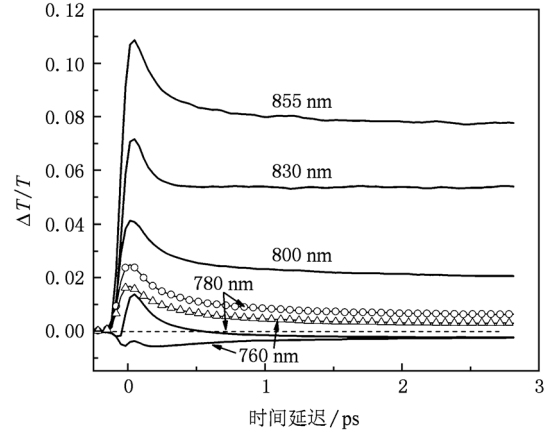


图1 GaAs 中瞬态透射变化动力学的激光波长依赖. 实线为探测器上抽运/探测比保持不变时,不同波长下的瞬态透射变化率时间延迟曲线. 而带空心符号的线为增大探测器上抽运/探测比后测量的 760 nm 和 780 nm 波长的瞬态透射变化率时间延迟曲线

其中 $C_{\text{th}} = \frac{e^2 (2\mu_i)^{3/2}}{2\pi\epsilon_0 c \eta m_0^2 \hbar^2} \langle |p_{\text{cv}}^2(E)| \rangle_i$, ($i=1, h$, 分别为轻空穴和重空穴), $E = \hbar\omega$ 为光子能量, E_g 为带隙. 对于 GaAs 体材料,室温下 $E_g = 1.42 \text{ eV}$.

有光激发载流子布居时,吸收系数为

$$\alpha = \frac{C_{\text{lh}}}{E} \sqrt{E - (E_g + \Delta E_g)} [f_v(E_{\text{ah}}) - f_c(E_{\text{bh}})] + \frac{C_{\text{lh}}}{E} \sqrt{E - (E_g + \Delta E_g)} [f_v(E_{\text{al}}) - f_c(E_{\text{bl}})]. \quad (3)$$

只有带填充效应的吸收系数 α 简化为

$$\alpha_{\text{BF}} = \frac{C_{\text{lh}}}{E} \sqrt{E - E_g} [f_v(E_{\text{ah}}) - f_c(E_{\text{bh}})] + \frac{C_{\text{lh}}}{E} \sqrt{E - E_g} [f_v(E_{\text{al}}) - f_c(E_{\text{bl}})]. \quad (4)$$

只考虑带隙重整化的吸收系数 α 简化为

$$\alpha_{\text{BGR}} = \frac{C_{\text{lh}}}{E} \sqrt{E - E_g - \Delta E_g} + \frac{C_{\text{lh}}}{E} \sqrt{E - E_g - \Delta E_g}. \quad (5)$$

带隙重整化效应引起的带隙收缩量 ΔE_g ^[15] 为

$$\Delta E_g = \Delta E_{\text{gWolff}} [1 - \exp(-N/N_{\text{critical}})]. \quad (6)$$

式中 $N_{\text{critical}} = 4.5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, 称为 GaAs 的临界载流子浓度. 其他参数与文献^[14,15] 相同.

利用上述公式模拟计算的结果如图2所示. BF 标注的虚线为带填充效应贡献, BGR 标注的点线为带隙重整化贡献,而 Total 标注的实线为两种效应的总贡献. 实心圆点为图1中 3 ps 延迟时间处的透射变化率. 显然,760 nm 和 780 nm 两波长处的负透射

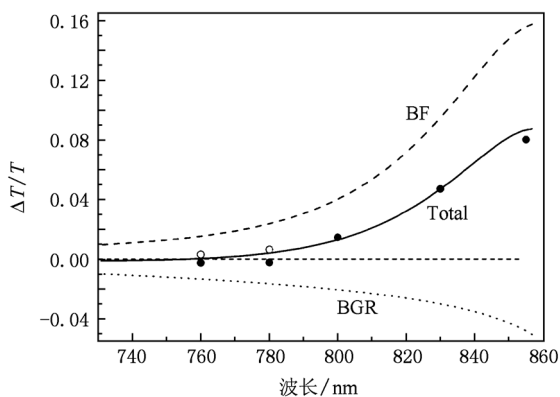


图2 光激发载流子感应的带填充效应(BF)、带隙重整化效应(BGR)和两者共同(Total)对探测光透射变化率的贡献的模拟计算

变化率信号与模拟计算结果不符. 模拟计算结果显示在此波段的透射变化率应该是正的. 结合延迟零点附近的无法解释的振荡现象,我们因此认为图1中760 nm和780 nm两波长的瞬态透射变化率延迟曲线测量结果是错误的.

3.3. 探测器输出信号波形分析

为了弄清导致760 nm和780 nm波长实验信号错误的物理起因,我们首先分析了光电二极管输出信号波形. 图3(a)所示即为示波器显示的780 nm波长处,不同探测光延迟时间时的光电二极管输出信号波形图. Ref标注的准方波信号反映抽运光通过样品散射到探测器上的光信号波形(阻挡探测光),周期调制来源于光学斩波器对抽运光的调制. 高电平对应斩波器打开,即有抽运,而低电平对应斩波器关闭,即无抽运. 图中上部的三条曲线,如标注所示,分别表示探测脉冲相对抽运脉冲的延迟时间为-7 ps(虚线)、0 ps和2.7 ps时探测器输出的电信号波形. 非常令人惊讶,波形变成如此复杂的形状,而不是类似Ref信号那样的准方波,特别是-7 ps的波形更难想象,因为抽运脉冲延后,还没有激发样品,探测光的波形却发生了变化,原因将在下节讨论. 下面重点讨论这样的信号波形如何导致了图1中那样的振荡的瞬态透射变化曲线. 考察斩波器打开和关闭期间接近尾部时的信号幅度,如图3(a)中垂直虚线标注处,因此处波形变化缓慢、相对稳定,不像斩波器刚打开和关闭时信号变化那样剧烈. 对-7 ps的虚线波形, $V_a < V_b$, 称这样的波形为“反相波形”,因为相对Ref信号(锁相放大器的

参考信号)的 $V_a > V_b$ 是反相的. 而对0 ps波形,有 $V_a > V_b$,称为“正相波形”.

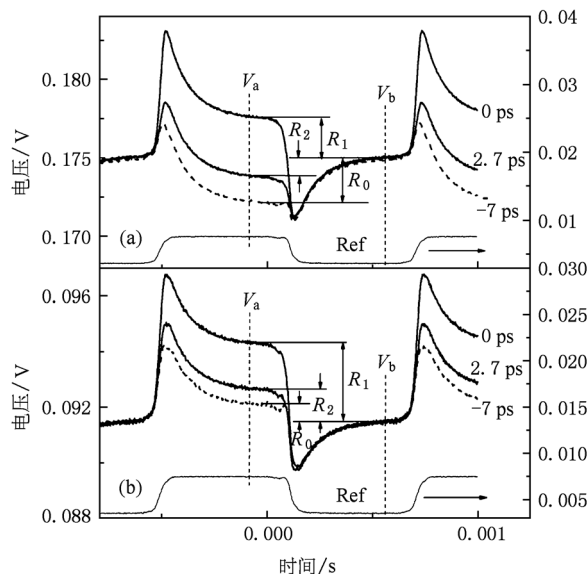


图3 (a)780 nm波长处,在不同延迟时间时,探测器输出信号波形;(b)提高抽运/探测比后,探测器输出信号波形. 全部为正相波形. R_0, R_1, R_2 指信号的调制幅度. Ref标示波形为抽运光散射贡献. V_a 和 V_b 为垂直虚线处各波形的强度

锁相放大器(LIA)在R模式(测量调制信号的绝对幅度,常用模式)下,测量的值是正比于信号的调制幅度的绝对值的,即正比于 R_0 (-7 ps), R_1 (0 ps)和 R_2 (2.7 ps),而对信号的相位是不灵敏的,即调制幅度一样的正相和反相信号的测量结果是一样的. 基于LIA的此特性,就能理解图1中780 nm波长瞬态信号(如无特别说明,以下讨论中所指的瞬态信号均指此信号)振荡产生的原因了. 如图3(a)所示,在-7 ps时,虚线调制信号是反相波形的,此时LIA的测量值正比于 R_0 ,为瞬态信号的背景强度(图1中已扣除此背景,设置为零基线). 当延迟时间增加到0 ps时,波形变成了正相波形,调制幅度为 R_1 . 从反相波形变为正相波形,意味着调制幅度经历从 $R_0 \rightarrow 0 \rightarrow R_1$ 变化. 从 $R_0 \rightarrow 0$ 变化正好对应瞬态信号中零点前的凹坑(负信号)的产生,而从 $0 \rightarrow R_1$ 变化正好对应从凹坑的反弹,信号再次变强. 当延迟时间继续增加,调制幅度 R 继续增大,直至出现一个瞬态正峰,对应的波形调制幅度记为 R_{max} . 之后,继续增加延迟时间,由于吸收饱和效应减弱, R 又开始逐渐减小,所以瞬态信号开始衰减. 当延迟时间增加到2.7 ps时,如图3(a)所示,波形再次变为反相波形,幅度为 R_2 . 这意味着信号幅度

经历了 $R_{\max} \rightarrow 0 \rightarrow R_2$ 的变化. 从 $R_{\max} \rightarrow 0$ 的变化, 意味着瞬态信号再次从正峰衰减到零点前的凹坑信号幅度(负信号), 如图 1 中瞬态信号再次跨过零基线, 变为负值所示. 而从 $0 \rightarrow R_2$ 的变化, 负信号幅度又开始逐渐减小, 如图 1 中瞬态信号尾部一直为负值, 并且幅度略小于凹坑信号幅度所示.

上面的分析表明, 瞬态延迟信号振荡产生的原因在于探测器输出的调制信号随延迟时间扫描出现多次反相. 因而要获得正确的瞬态延迟信号, 必须保证探测器输出的调制信号总是正相波形. 为此, 必须对反相波形进行矫正. 要矫正反相波形, 就必须增加探测器上的抽运/探测比, 因为探测器上的光信号由抽运散射光和探测光强之和组成, 而抽运散射光贡献的总是正相波形. 出现反相波形, 表明探测光贡献的是反相波形, 并且其调制幅度大于抽运散射光贡献的正相波形的调制幅度. 本文提出两种增加抽运/探测比的方法. 一是增加抽运光的散射, 如将透过样品的抽运光适量地散射进探测器, 直至探测器输出的调制信号变为正相波形. 这种方法完全颠覆了目前认为应尽量减小抽运散射光对探测器的散射贡献的思想. 二是单独衰减探测光强而保持抽运散射光强不变, 直至探测器输出的调制信号变为正相波形. 然而, 这种方法是牺牲探测灵敏度为代价的, 可测量的变化量将减小. 而衰减探测光强又有两种方法: 样品前和后衰减法. 样品前衰减法等价于进一步提高样品上的抽运/探测比. 样品后衰减法则要利用半波片和偏振片的组合. 本文对这三种矫正反相波形的方法进行实验验证, 均获得了正确的瞬态透射变化延迟扫描曲线. 如图 3(b) 所示, 是采用半波片与偏振片组合矫正反相波形后获得的正相波形. 在探测器前放置偏振片, 设置其偏振通光方向与抽运光偏振一致. 在样品前的探测光中放入半波片, 并旋转其方位角, 使探测器上的探测光强减弱(样品上不变), 直至出现正相波形, 如图 3(b) 中 -7 ps 虚线波形所示. 当延迟时间扫描时, 调制信号的幅度经历 $R_0 \rightarrow R_1 \rightarrow R_2$ 变化, 但没有经历反相变化, 结果获得图 1 中空圆符号显示的 780 nm 瞬态透射变化率延迟曲线. 类似地, 也获得了空心三角符号显示的 760 nm 的瞬态延迟曲线. 它们均显示出瞬态饱和效应, 不再出现原来那样的振荡吸收增强效应. 它们的透射变化率如图 2 中两个空心圆点所示, 与理论计算很好符合.

上面的分析表明, 正确设置探测器上的抽运/探测比是获得正确的时间延迟瞬态信号的前提, 而目前的超快测量领域中却忽视了此参数, 甚至认为应尽量小, 所以导致了一些错误的瞬态信号报道^[1,7].

3.4. 反相波形的起源

虽然我们理解了反相波形是导致瞬态延迟信号振荡或反相的根源, 但还不清楚反相波形是如何产生的. 如图 3(a) 和(b) 所示, 在 -7 ps 延迟时, 信号波形就已经变形, 不是类似 Ref 的信号波形. 这说明信号光已经受到了抽运光的调制. 然而, -7 ps 延迟时间意味着探测光超前抽运光到达样品, 而探测光仍然受到调制. 我们推测样品中存在长寿命的光感应吸收过程, 寿命长于飞秒激光脉冲的重复周期, 即大于 11 ns. 这样, 探测光就受到了前一个或多个抽运脉冲感应的吸收过程的调制. 图 3(a) 和(b) 中, 对应 Ref 信号的上升沿处(斩波器开始打开), 虚线信号出现跳跃式上升; 然后开始持续衰减, 直至 Ref 信号的下降沿处(斩波器开始关闭)又出现跳跃式下降. 然后, 信号又开始持续上升, 直至下一个周期的上跳开始. 这种信号波形变化正好支持我们的存在长寿命的光感应吸收过程的观点. 上/下跳跃正好对应抽运光的打开/关闭, 而上跳之后的持续衰减正是由于连续抽运光脉冲持续地感应增强长寿命吸收过程, 导致对探测光的吸收持续增加, 透射持续减弱; 而下跳后的持续上升正是由于抽运光关闭后, 其感应的长寿命吸收过程持续衰减导致的透射增加. 为了证实我们的推测-存在长寿命吸收过程, 我们使用来自钛宝石放大器的 1 kHz 重复率的飞秒激光脉冲列, 在负延迟时间下观察探测器的输出信号, 发现 1 ms 周期的电脉冲不再受到抽运激光脉冲的调制. 因而证实了样品中的确存在微秒量级的长寿命吸收过程.

当延迟时间增加到等于或大于零后, 如图 3(a) 和(b) 中 0 ps 和 2.7 ps 波形所示, 仅上跳后并持续衰减的半周期信号发生变化, 几乎是向上平移, 而平移量随延迟时间变化. 此平移量正是来自抽运光激发的载流子感应的超快吸收饱和效应. 时间延迟瞬态透射变化正是反映的此效应变化, 如图 1 中的实验曲线所示. 但长寿命吸收过程可能导致超快瞬态过程的错误测量, 如图 1 中 760 和 780 nm 标示的两实线.

3.5. 长寿命吸收过程的起源

上述分析表明,长寿命吸收过程可能导致反相波形,从而引起瞬态延迟信号的错误测量.然而,长寿命吸收过程是如何产生的?我们目前还没有确切的结论,正在进一步研究中.本文中提出两种可能的长寿命吸收过程起源.

一种可能起源是深能级杂质或缺陷.有文献[16]研究报道了半绝缘 GaAs 中深能级杂质或缺陷的载流子捕获与释放动力学.的确发现深能级的寿命在亚毫秒量级^[16].这样就导致在斩波器打开期间深能级被连续抽运脉冲累计布居,而斩波器关闭后的深能级长时间释放载流子.因而导致图 3 所示的波形.

另一种可能是晶格温度变化引起的带隙调制效应.由于热传递是一个较慢的过程,连续脉冲激发有可能导致样品激发区温度明显的逐渐升高.斩波器打开期间,飞秒抽运脉冲列连续激发样品,因而可能使样品温度逐渐升高,进而带隙逐渐减小,从而吸收逐渐增强.而斩波器关闭后,样品逐渐冷

却,带隙逐渐恢复,因而吸收逐渐减小.结果也会导致图 3 所示的波形.然而,这种推测有待进一步的理论模拟和实验检验.

4. 结 论

本文在半绝缘本征 GaAs 薄膜样品上演示了长寿命吸收过程如何影响超快瞬态动力学过程的正确测量.长寿命吸收过程有可能导致反相波形,从而导致测量的瞬态信号反相或振荡.这种现象不仅限于 GaAs 样品,可能在 InGaN 样品中也存在,所以导致无法解释的振荡信号报道^[1,7].要防止错误的瞬态信号产生,就必须提高探测器上的抽运/探测比到适当的值,或者随时观察探测器输出波形是否为反相波形,而目前认为应尽量减小抽运散射光,即尽量减小探测器上的抽运/探测比的观点是不完全正确的,有可能导致错误的瞬态信号产生.本文的研究结果对于正确使用抽运-探测时间分辨光谱测量瞬态超快过程具有重要的指导意义和参考价值.

-
- [1] Wang H C, Lu Y C, Teng C C, Chen Y S, Yang C C, Ma K J, Pan C C, Chyi J I 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 033704
- [2] Lai T S, Liu X D, Xu H H, Jiao Z X, Wen J H, Lin W Z 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 192106
- [3] Lai T S, Teng L H, Jiao Z X, Xu H H, Lei L, Wen J H, Lin W Z 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 062110
- [4] Yu H L, Zhang X M, Wang P F, Ni H Q, Niu Z C, Lai T S 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 202109
- [5] Stanciu C D, Tsukamoto A, Kimel A V, Hansteen F, Kirilyuk A, Itoh A, Rasing Th 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 217204
- [6] Chen Z F, Gao R X, Wang Z X, Xu C D, Chen D X, Lai T S 2010 *J. Appl. Phys.* **108** 023902
- [7] Lioudakis E, Othonos A, Dimakis E, Lliopoulos E, Georgakilas A 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 121128
- [8] Wilhelmi B, Herrmann J 1980 *Sov. J. Quantum Electron.* **10** 1082
- [9] Hunsche S, Heesel H, Ewertz A, Kurz H 1993 *Phys. Rev. B* **48** 17818
- [10] Oudar J L, Hulin D, Migus A, Antonetti A 1985 *Phys. Rev. Lett.* **55** 2074
- [11] Lin W Z, Fujimoto G, Ippen E P 1987 *Appl. Phys. Lett.* **50** 124
- [12] Nagai T, Inagaki T J, Kanemitsu Y 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 1284
- [13] Ganikhanov F, Burr K C, Hiltion D J, Tang C L 1999 *Phys. Rev. B* **60** 8890
- [14] Bennett B R, Soref R A, Del Alamo J A 1990 *IEEE J. Quantum Electron.* **26** 113
- [15] Prabhu S S, Vengurlekar A S 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 7803
- [16] Mandelis A, Xia J 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 043704

Influence of long lifetime absorption process on the measurement of ultrafast carrier dynamics^{*}

Wang Wen-Fang Chen Ke Wu Jing-Da Wen Jin-Hui Lai Tian-Shu[†]

(*State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, School of Physics and Engineering,
Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China*)

(Received 17 January 2011; revised manuscript received 24 February 2011)

Abstract

The wavelength dependence of ultrafast relaxation dynamics of photoexcited carriers in bulk GaAs is studied using femtosecond time-resolved pump-probe transmission spectroscopy under the same photoexcited carrier concentration and the ratio of pump to probe in intensity. Negative and oscillating time-delayed signals are observed at central wavelengths of 760 nm and 780 nm and judged to be incorrect physically by comparison with a simulated computation result. It is found by waveform analysis that they are caused by the phase reversal of the output waveforms from a photodetector, while the phase reversal originates from a long lifetime absorption process existing in GaAs sample. It is pointed out that the phase reversal of the waveform can be corrected by raising the ratio of pump to probe in intensity at the photodetector, so that right transient traces can be obtained. However, raising the ratio is incompatible with the viewpoint that the scattered contribution to the photodetector from pump light should be filtered as much as possible. This result has an important reference value for the acquisition of correct ultrafast dynamics using time-resolved pump-probe spectroscopy.

Keywords: time-resolved pump-probe transmission spectroscopy, saturated absorption, enhanced absorption, bulk GaAs

PACS: 78.47.J – , 78.20.Ci, 78.66.Fd

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10874247, 61078027).

[†] Corresponding author. E-mail: stslts@mail.sysu.edu.cn