

GaAs 中带填充效应与带隙重整化效应的竞争*

滕利华¹⁾ 王霞¹⁾ 赖天树^{2)†}

1) (青岛科技大学数理学院, 青岛 266061)

2) (中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 物理系, 广州 510275)

(2010年1月11日收到; 2010年7月20日收到修改稿)

采用时间分辨线偏振光抽运-探测光谱研究常温下本征 GaAs 中载流子弛豫动力学, 观察到饱和吸收和吸收增强现象. 发现载流子浓度为 $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, 探测光子能量小于 1.549 eV 时, 饱和吸收现象比较明显, 反之, 有明显的吸收增强现象出现. 载流子浓度大于 $7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 的范围内, 吸收增强信号随时间增大没有减弱的趋势, 反而有继续增强的趋势. 理论上, 考虑带填充效应和带隙重整化效应的竞争, 模拟得到与实验谱线相符合的结果. 同时考虑带填充和带隙重整化效应, 给出了用于拟合载流子寿命的新的经验公式.

关键词: 飞秒抽运-探测光谱, 带填充效应, 带隙重整化效应, 载流子寿命

PACS: 72.80.Ey, 72.15.Lh, 72.20.Jv

1. 引言

GaAs 材料具有直接带隙、共振光学非线性系数大、电子迁移率高、耐高温、抗辐射等优点, 在超高频、低功耗、低噪音光电子器件方面具有独特优势, 但是受激载流子的弛豫寿命仍制约着 GaAs 基光电子器件的响应速度^[1], 因此, 受激载流子弛豫过程的研究具有重要意义. 飞秒抽运-探测实验中, GaAs 导带内受激载流子的弛豫过程主要有热化过程^[2,3], 冷却过程^[4-7]以及复合过程^[6,7]. 受激载流子的弛豫动力学研究以前主要集中在前两个过程^[4,5], 复合过程中, 实现费米分布的载流子在导带内的布居会导致探测光的吸收减弱, 出现带填充效应^[8-10]. 另外在高注入的情况下, 载流子之间的交换和相互作用引起带隙收缩, 产生带隙重整化效应^[11-19], 带隙变窄, 探测光探测到导带中较原来态密度更大的能级, 会对探测光形成吸收增强.

80年代以来, 人们从实验上利用材料发光谱的红移研究了不同条件下带隙重整化效应引起的带隙变化量^[11,20,21], 但发光法只能用于带底附近带隙重整化效应的研究, 较高能级上的带隙重整化效应仍缺乏实验的研究. 90年代后, 带隙重整化效应开

始应用于半导体抽运-探测实验中吸收增强现象的定性解释^[10,22,23], 但用抽运-探测实验定量的研究各能级上的带隙重整化效应仅在 9.6 K 的低温下有报道^[24], 尤其是常温下带隙重整化效应随延迟时间的演化仍未见报道. 本文采用时间分辨线偏振光抽运-探测实验光谱研究常温下本征 GaAs 中各能级上带填充效应和带隙重整化效应的竞争, 与低温下不同, 出现吸收增强现象时, 吸收增强信号随时间增大没有减弱的趋势, 反而有继续增强的趋势. 对本征 GaAs 抽运-探测实验中带填充和带隙重整化效应在不同能级以及较长时间的相对强弱关系进行了理论和实验的定量比较与分析, 得到了相符合的结果. 同时考虑带填充效应和带隙重整化效应, 我们给出一个新的经验公式, 由实验曲线拟合得到载流子寿命与过超能量的关系.

2. 实验及结果讨论

实验样品 GaAs 薄膜由分子束外延 (MBE) 沿 (001) 方向生长, 无应力分子吸附在宝石片衬底上, 厚度为 0.5 μm . 由自锁模钛宝石激光器输出的脉宽约 100 fs, 重复率为 82 MHz 的线偏振激光脉冲列通过一个标准的抽运-探测装置^[8], 输出的抽运/

* 国家自然科学基金 (批准号: 10974106), 青岛科技大学引进人才科研启动基金 (批准号: 4000022428) 山东省杰出青年基金 (批准号: JQ201018), 山东省自然科学基金重点项目 (批准号: ZR2009AZ002) 资助的课题.

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

探测光强比为 3/1 的平行抽运和探测光束通过一个焦距为 50 mm 的透镜聚焦于样品的同一点上, 光斑直径约 25 μm . 透过样品的线偏振探测光的强度变化由光电管转换为电流, 并由锁相放大器检测. 锁模激光的波长可在 750—850 nm 的范围内调谐, 实验现场测试样品在每个波长的吸收率, 并控制抽运光功率, 使得每个实验测试波长下, 抽运光激发的载流子浓度均约为 $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

图 1 中实线所示为六种典型光子能量下获得的探测光透射率相对变化量随时间的扫描曲线. 实验发现探测光子能量大于 1.549 eV 时, 透射信号会降到背景以下, 即吸收系数大于未被激发时的情况出现, 有明显的吸收增强现象, 并且光子能量越大吸收增强现象越明显, 与低温下吸收增强信号随时间增大而迅速衰减不同^[24], 在延迟时间为前 400 ps 的范围内没有观察到吸收增强信号的衰减反而有继续增强的趋势. 光子能量为 1.549 eV, 延迟时间约为 190 ps 时由饱和和吸收现象变为吸收增强现象. 探测光子能量在小于 1.549 eV 的范围内时有明显的饱和吸收现象出现, 并且能量越小, 即越接近导带底, 饱和吸收现象越明显, 饱和吸收信号随时间的衰减较为明显.

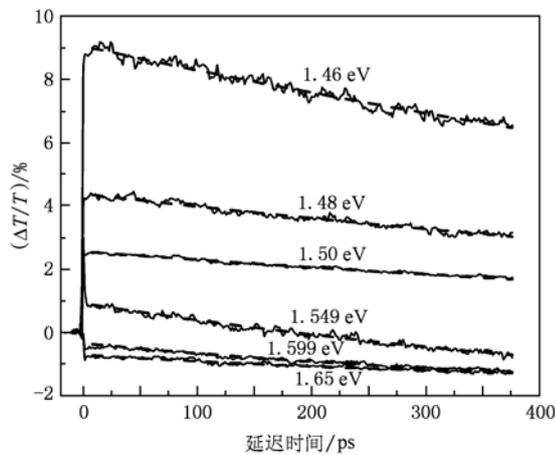


图 1 透射率相对变化量随探测光子能量及延迟时间的变化. 实线为实验曲线, 虚线为拟合曲线. 对应于 1.549 eV 的曲线被乘以 2, 对应于 1.599 eV 和 1.65 eV 的曲线均被乘以 3

3. 模拟计算

饱和吸收现象和吸收增强现象的出现实际上是受激载流子对导带、价带态的填充效应和载流子之间的交换和相互作用引起的带隙重整化效应相

互竞争的结果.

未受激发时没有载流子注入, 此时对光子能量为 E 的光的本征吸收系数为^[10]

$$\alpha_0(E) = \frac{C_{lh}(E)}{E} \sqrt{E - E_g} + \frac{C_{lh}(E)}{E} \sqrt{E - E_g}, \quad (1)$$

式中, $C_{lh}(E) = \frac{e^2(2\mu_i)^{3/2}}{2\pi\epsilon_0 c \eta m_0^2 \hbar^2} \langle |p_{cv}^2(E)| \rangle_i$, $\mu_i = m_e m_{ih} / (m_e + m_{ih})$ 为电子和空穴的折合质量, $i=1$ 或 h , 分别表示轻或重空穴. m_0 为自由电子质量, m_e , m_{lh} 和 m_{hh} 分别为电子、轻空穴和重空穴的有效质量, 对于 GaAs, $m_e = 0.066m_0$, $m_{lh} = 0.45m_0$, $m_{hh} = 0.084m_0$ ^[9]. c 为光速, E_g 为材料的带隙, 对于 GaAs, 常温下 $E_g = 1.423 \text{ eV}$ ^[10]. 参考文献[10], $\langle |p_{cv}^2(E)| \rangle_i$ 为价带与导带之间的跃迁矩阵元平方的平均值, 与材料带隙有关, 计算过程中利用考虑带隙重整化效应后的带隙.

抽运光激发后有载流子注入, 考虑带填充效应和带隙重整化效应, 对光子能量为 E 的光的吸收系数为^[9]

$$\alpha(E, N, T) = \frac{C_{lh}(E, N)}{E} \sqrt{E - (E_g + \Delta E_g(N))} \times (f_v(E_{al}) - f_c(E_{bl}, T_e)) + \frac{C_{lh}(E, N)}{E} \times \sqrt{E - (E_g + \Delta E_g(N))} (f_v(E_{ah}) - f_c(E_{bh}, T_e)), \quad (2)$$

其中, E_{bl} 和 E_{bh} 分别为从轻、重空穴价带探测到的导带中电子态的过超能量, E_{al} 和 E_{ah} 分别为被探测到的价带中轻、重空穴态的过超能量^[9,10], 它们均依赖于光子能量 E . T_e 为导带中热载流子的温度, f_v 和 f_c 分别为电子在价带和导带中的费米分布函数^[9], ΔE_g 为带隙变化量, 与注入的载流子浓度 N 有关^[10]

$$\Delta E_g(N) = - \left(\frac{e}{2\pi\epsilon_0\epsilon_s} \right) \left(\frac{3N}{\pi} \right)^{1/3} \times [1 - \exp(-N/N_{\text{critical}})], \quad (3)$$

其中, 对于 GaAs, $N_{\text{critical}} = 2.7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, 静态介电常数 $\epsilon_s = 13.1$ ^[9].

探测光透射率的相对变化量为

$$\frac{\Delta T(t)}{T} \approx - \Delta\alpha(t)L, \quad (4)$$

其中, $\Delta\alpha(t)$ 为抽运光激发前后探测光的吸收系数之差, L 为样品厚度.

由(1)–(4)式模拟得到分别只考虑带填充效应、带隙重整化效应以及同时考虑两种效应时复合过程起点处透射率相对变化量随探测光子能量的变化如图2中虚线、点线和实线所示,计算中取复合过程起点处热载流子温度 T_e 为 300 K, 载流子浓度为 $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. 从带底到 1.65 eV 的能量范围内态密度逐渐增大,如图2中虚线所示,接近带底的量子态被电子占据的概率较高,带填充效应较强,远离带底的量子态被电子占据的概率较小,带填充效应较弱,因而,探测光子能量为 1.46 eV 到 1.65 eV 的范围内应观察到由强到弱的饱和吸收信号,然而,由于带隙重整化效应的出现引起带隙收缩,探测光探测的能级变为态密度更大的能级,吸收增强. 载流子浓度为 $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 时各能级上 $\Delta E_g(N)$ 基本相同^[25],但由于导带各能级态密度不同,如图2中点线所示,不同探测光子能量下带隙重整化效应引起的吸收系数的相对变化量不同,但差别比带填充效应小. 因而,由于带填充效应和带隙重整化效应相互竞争的出现,同时考虑两种效应时,复合过程起点处,探测光子能量为 1.46 eV 到 1.57 eV 的范围内观察到由强到弱的饱和吸收信号,1.57 eV 以上观察到吸收增强信号,探测光子能量越大吸收增强信号越强,与实验结果基本一致.

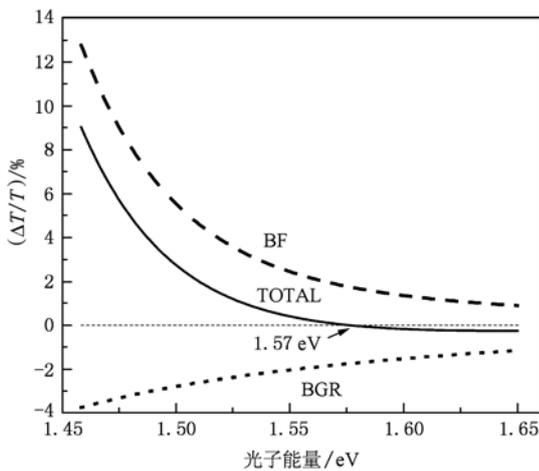


图2 理论计算的透射率相对变化量与探测光子能量的关系 BF 标识的虚线和 BGR 标识的点线分别为带填充效应和带隙重整化效应对透射率相对变化量的贡献, TOTAL 标识的实线为同时考虑两种效应时计算的透射率相对变化量

考虑载流子浓度对带填充和带隙重整化效应的影响,由(1)–(4)式经理论模拟得到复合过程起点处探测光子能量为 1.65 eV 时只考虑带填充和带隙重整化效应以及同时考虑两种效应时探测光透

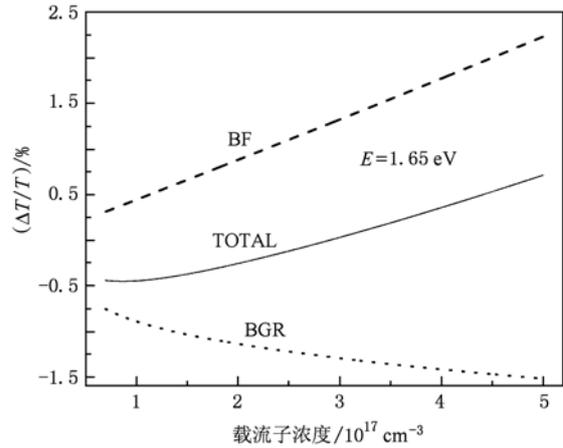


图3 理论计算的透射率的相对变化量随载流子浓度的变化 BF 标识的虚线和 BGR 标识的点线分别为带填充效应和带隙重整化效应对透射率相对变化量的贡献, TOTAL 标识的实线为同时考虑两种效应时计算的透射率相对变化量

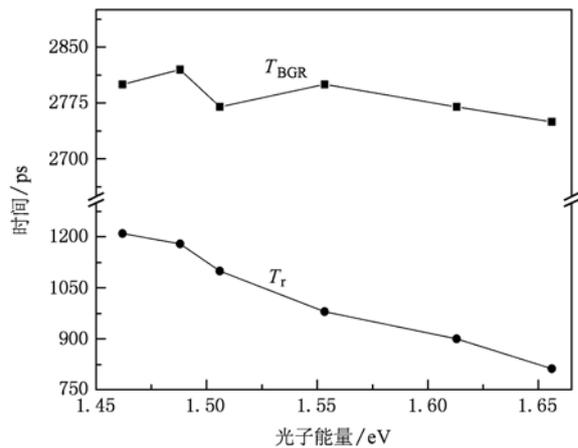


图4 载流子寿命随探测光子能量的变化 T_{BGR} 标识的实心方形点为由实验数据拟合得到的带隙重整化效应恢复时间, T_r 标识的实心圆点为由实验数据拟合得到的载流子寿命

射的率相对变化量随浓度的变化如图3中虚线、点线和实线所示,载流子浓度增大时,导带中各个量子态被电子占据的概率增大,带填充效应明显增强,饱和吸收信号增强. 同时,图3中点线所示,载流子浓度增大带隙重整化效应增强,带隙收缩量增大,吸收增强信号也在增强,反之,随载流子浓度的衰减带填充效应和带隙重整化效应同时衰减,且带填充效应引起的饱和吸收信号衰减速度较快,而在载流子浓度大于 $7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 的范围内,带隙重整化效应引起的吸收增强信号衰减速度慢的多. 实验中探测光子能量大于 1.549 eV, 出现吸收增强时,由于带填充效应和带隙重整化效应仍同时存在,在

前 400 ps 内前者衰减速度明显大于后者,所以吸收增强信号没有恢复趋势,反而继续增强,体现出的是带填充效应的衰减. 只有当载流子浓度衰减到接近 $7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 时带隙重整化效应才会迅速减弱,吸收增强信号迅速衰减. 与常温下不同,在 9.6 K 的低温下^[24],出现吸收增强信号时,由于随载流子浓度的衰减,带隙重整化效应的衰减速度大于带填充效应,所以吸收增强信号随时间增大有明显的减弱趋势.

4. 载流子寿命的拟合方法

由于带隙重整化效应的出现导致吸收系数增大,在探测光子能量较大时甚至会出现明显的吸收增强现象,以往只考虑带填充效应,利用单指数公式 $\Delta T/T = A \exp(-t/T_r)$ 对实验曲线进行拟合得到载流子寿命的方法不再普遍适用,有载流子注入时同时考虑带填充效应和带隙重整化效应,吸收系数变化量可近似表示为带填充效应和带隙重整化效应分别引起吸收系数的变化量 $\Delta\alpha_{\text{BF}}$ 和 $\Delta\alpha_{\text{BGR}}$ 之和,探测光透射率的相对变化量为

$$\frac{\Delta T}{T} \approx -(\Delta\alpha_{\text{BF}} + \Delta\alpha_{\text{BGR}})L$$

$$= Ae^{-t/T_r} + Be^{-t/T_{\text{BGR}}}, \quad (5)$$

其中, A 和 B 均为拟合系数, T_r 和 T_{BGR} 分别为载流子寿命和带隙重整化效应的恢复时间. 利用以上公式对实验曲线进行拟合,拟合曲线如图 1 中虚线所示,与实验曲线符合很好,拟合得到的载流子寿命 T_r 以及带隙重整化效应恢复时间 T_{BGR} 随过超能量的变化如图 4 所示,载流子过超能量较小时,主要发生带间复合过程,而载流子过超能量较大时,同时

发生带间复合和带内弛豫过程,因此,载流子寿命随过超能量的增大有明显减小的趋势^[26]. 从拟合结果中发现 T_r 小于 T_{BGR} ,恰好说明在前 400 ps 内带填充效应随时间的衰减速度大于带隙重整化效应随时间的衰减速度,另外,各能级上带隙重整化效应的衰减速度基本相同,主要是由于带填充效应只与相应能级上载流子浓度有关,其衰减速度反映了所探测能级上载流子浓度的衰减,而带隙重整化效应则与总的载流浓度有关,与所探测能级关系不大,所以各能级上带隙重整化效应的衰减速度基本相同.

5. 结 论

利用飞秒抽运-探测实验研究各能级以及较长时间内带填充效应和带隙重整化效应的相互竞争,得到了理论和实验相一致的结果. 初始载流子浓度为 $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$,探测光子能量在 1.46—1.65 eV 的范围内时带填充效应随探测光子能量的增大而减弱,带隙重整化效应主要与载流子浓度有关,因此随探测光子能量的增大吸收不断增强,由饱和吸收现象变为吸收增强现象. 与 9.6 K 的低温下不同,出现吸收增强现象时,在载流子浓度大于 $7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 的范围内,由于随载流子浓度的衰减带填充效应衰减速度比带隙重整化效应衰减速度快,吸收增强信号随时间有继续增强的趋势. 给出了由实验谱线拟合载流子寿命的新的经验公式,由实验谱线拟合得到载流子寿命随过超能量的依赖关系,对于半导体受激载流子弛豫过程的研究具有重要意义.

[1] Jiang Z, Zhang X L, Huang D X 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 3196 (in Chinese) [蒋 中、张新亮、黄德修 2006 物理学报 **55** 3196]

[2] Hunsche S, Heesel H, Ewertz A, Kurz H 1993 *Phys. Rev. B* **48** 17818

[3] Leitenstorfer A, Fürst C, Laubereau A, Kaiser W, Tränkle G, Weimann G 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1545

[4] Lin W Z, Fujimoto L G, Ippen E P 1987 *Appl. Phys. Lett.* **50** 124

[5] Lin W Z, Schoenlein R W, Fujimoto J G 1988 *IEEE Journal of Quantum Electronics* **24** 267

[6] Rosenwaks Y, Hanna M C, Levi D H, Szymd D M, Ahrenkiel R K, Nozik A J 1993 *Phys. Rev. B* **48** 675

[7] Fatti N D, Langot P, Tommasi R, vallée F 1999 *Phys. Rev. B* **59** 4576

[8] Guo B, Wen J H, Zhang H C, Liao R, Lai T S, Lin W Z 2001 *J. Infrared Millim. Waves.* **20** 179 (in Chinese) [郭 冰、文锦辉、张海朝、廖 睿、赖天树、林位株 2001 红外与毫米波学报 **20** 179]

[9] Bennett B R, Soref R A, Alamo J A D 1990 *IEEE Journal of Quantum Electronics* **26** 113

[10] Prabhu S S, Vengurlekar A S 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 7803

- [11] Tränkle G, Lach E, Forchel A, Scholz F, Ell C, Haug H, Weimann G, Griffiths G, Kroemer, Subbanna S 1987 *Phys. Rev. B* **36** 6712
- [12] Güven K, Tanatar B 1996 *Superlatt. Microstruct* **20** 81
- [13] Juodawlkis P W, Ralph S E 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 1722
- [14] Nagai T, Inagaki T J, Kanemitsu Y 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 1284
- [15] Zhang Y, Samra S D 2005 *Phys. Rev. B* **72** 125303
- [16] Collet J H, Hunsche S, Heesel H, Kurz H 1994 *Phys. Rev. B* **50** 10649
- [17] Stanton C J, Bailey D W 1993 *Phys. Rev. B* **47** 1624
- [18] Ganikhanov F, Burr K C, Hilton D J, Tang C L 1999 *Phys. Rev. B* **60** 8890
- [19] Henriques A B, Obukhov S, Goncalves L C D, Souza P L, Yavich B 1997 *phys. Stat. sol. (a)* **164** 133
- [20] Tränkle G, Leier H, Forchel A 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 419
- [21] Nagai T, Inagaki T J, Kanemitsu Y 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 1284
- [22] Langot P, Tommasi R, vallée F 1996 *Phys. Rev. B* **54** 1775
- [23] Ortiz V, Nagle J, Alexandrou A 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 2505
- [24] 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
- [25] Ahrenkiel R K, Lundstrom M S 1993 *Minority Carriers in III-V Semiconductors: Physics and Applications* (New York: Academic) p274
- [26] Xu Z Y, Tang C L 1984 *Appl. Phys. Lett.* **44** 69

Competition between band filling effect and band-gap renormalization effect in GaAs *

Teng Li-Hua¹⁾ Wang Xia¹⁾ Lai Tian-Shu^{2)†}

1) (School of Mathematics and physics, Qingdao University of Science and Technology, Qingdao 266061 China)

2) (State Key laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, School of Physics and Engineering,

Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China)

(Received 11 January 2010; revised manuscript received 20 July 2010)

Abstract

Time-resolved linearly polarized pump-probe spectroscopy is used to investigate carrier relaxation dynamics in intrinsic GaAs. Absorption saturation and absorption enhancement are observed. It is found that the absorption saturation can be observed obviously when the photon energy is smaller than 1.549eV, otherwise, the absorption enhancement can be observed at a carrier density of $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. When the carrier density is above $7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, the absorption enhancement increases rather than decreases with delay time. The simulation results with consideration of the competition between band filling effect and band-gap renormalization effect are in good agreement with our experimental results. With the band filling effect and band-gap renormalization effect considered, we develop a new analytical model to retrieve the carrier lifetime.

Keywords: femtosecond pump-probe spectroscopy, band filling effect, band-gap renormalization effect, carrier lifetime

PACS: 72.80.Ey, 72.15.Lh, 72.20.Jv

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10974106), the Startup Foundation of Qingdao University of Science and Technology (Grant No. 4000022428), the Excellent Youth Foundation of Shandong Scientific Committee (Grant No. JQ201018), the Natural Science Foundation of Shandong Province of China (Grant No. ZR2009AZ002).

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