

# GaAs 激子吸收的微微秒光谱

梁 培 辉\*

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

R. Lambrich\*\*

(西德马克斯·普朗克固体研究所)

## 提 要

运用微微秒光谱学中的激发与探测方法,测量了5K下GaAs样品的时间分辨吸收光谱。结果表明:激子被屏蔽的时间约600 ps,从电子-空穴对等离子体到激子态的转变不是一个突变过程,在1 ns之后出现一个来源于激子被散射的“透过”峰。

## 一、前 言

强激发下半导体的时间分辨吸收光谱给研究光学激发热载流子的分布、热载流子对能带结构影响的动力学过程提供重要的信息和数据。测量激子吸收与光激发的关系,是了解自由载流子与激子相互作用的一种有效方法。

强激发下竖直跃迁半导体的动力学近年来颇受重视。GaAs是一种研究得较多的半导体材料。低温下GaAs样品,在适当的光激发下(光子能量大于禁带宽度1.52 eV,或者利用双光子吸收,光子能量大于0.76 eV),大致有如下几种表现:

(1) 随着激发光强增大,激子吸收峰变宽,同时吸收下降,最后由于自由载流子的大量出现而被屏蔽,这个过程短于1 ps<sup>[1~3]</sup>。

(2) 大量载流子出现在导带上,使禁带变窄,光学吸收边向长波方向移动,产生感应吸收和增益<sup>[1,2,4]</sup>。

(3) 所形成的高密度电子-空穴对等离子体,通过热载流子发射纵向光学声子而逐步冷却,弛豫时间为几百微微秒<sup>[4]</sup>。

最近在光学双稳态的研制中已经出现一种GaAs自由激子器件<sup>[5,6]</sup>,将几微米厚的GaAs外延薄片构成Fabry-Perot腔,利用光脉冲产生大量的载流子,由于载流子的库仑屏蔽作用,激子频率附近的折射率受到调制,从而形成一种以色散为基础的光学双稳态器件。当激发脉冲强度为1 mW/ $\mu\text{m}^2$ 时,低温下光学双稳态的上升时间短于1 ns,关闭时间为40 ns。

因此研究低温下GaAs光激发热载流子的屏蔽过程,对半导体物理或者研制新型激子器件都是有意义的。

收稿日期: 1981年7月28日

\* 实验工作在西德的马克斯·普朗克固体研究所(斯图加特)完成,并对洪堡基金会资助表示感谢。

\*\* 作者现在西德Dräg公司。

## 二、实 验

我们使用外延法生长的高纯度 GaAs 样品,其厚度为几个微米,面积为几个平方毫米。实验时样品贴在透光的金属网上。实验在液氮温度下进行。

在测量时间分辨的吸收光谱之前,我们对样品作了挑选,因为并不是每一片样品都合乎要求,有些样品也只能在局部区域探测到激子的存在。激子吸收谱的观察由于采用下述装置变得很方便:以白炽灯为光源,灯光通过样品进入一台半米光栅单色仪出射狭缝处连接一台光学多道分析仪,如果存在激子,可以实时在荧光屏上看到激子共振吸收( $n=1$ )的光谱。移动被测样品的位置,便能了解样品的均匀性。

我们运用微微秒光谱学中典型的激发与探测方法<sup>[7]</sup>测量 GaAs 激子吸收的时间分辨光谱,所用的光学系统如图 1 所示。

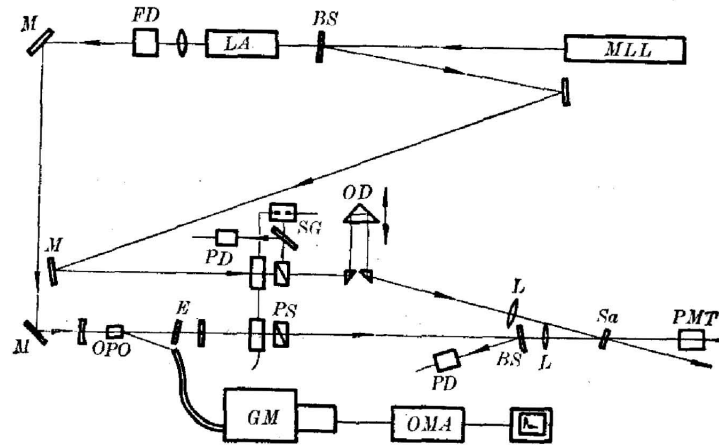


图 1 实验装置示意图

L—透镜; M—反射镜; BS—分束器; PD—光二极管; PMT—光电倍增管;  
Sa—样品; FD—倍频; LA—放大器; SG—球隙; MLL—锁模激光器;  
OD—光学延迟; OPO—光学参量振荡器; GM—光栅单色仪; OMA—光学  
多道分析仪; PS—泡克耳开关; E—标准具

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental arrangement

L—Lens; M—Mirror; BS—Splitter; PD—Photodiode; PMT—Photomultiplier;  
Sa—Sample; FD—Frequency doubling; LA—Amplifier; SG—Spark gap; MLL—Mode-locked laser; OD—Optical delay; OPO—Optical parameter oscillator; GM—Grating monochromator; OMA—Optical multi-channel analyser; PS—Pockels switch; E—Etalon

可饱和吸收染料(Eastman 9860)被动锁模 Nd:YAG 激光器产生锁模脉冲序列,重复率为 10 Hz,序列内含 10~12 个脉冲,能量约 5 mJ。序列内每个脉冲的半功率宽度为 25 ps。反射率为 80% 的分光板 BS 将 1.06  $\mu\text{m}$  的激光束分为两路,分光板反射出的光束经光学延迟用作激发光束,透射光束经另一台 Nd:YAG 放大器放大后被 CDA 晶体倍频为 0.53  $\mu\text{m}$  的绿光,并以同步泵浦的方式泵浦一台温度调谐的 LiNbO<sub>3</sub> 光学参量振荡器, LiNbO<sub>3</sub> 晶体置于温度可变的恒温炉中,为了防止晶体变化,工作时通氧气保护。当温度从 100°C 变化到

300°C, 参量振荡器的输出波长从 829 nm 变到 689 nm。脉冲序列的能量与输出波长有关, 输出能量为几个微焦耳到二十几个微焦耳。光学参量振荡器内放置一个 Fabry-Perot 标准具抑制纵模数以限制光束的谱线宽度。转动标准具的角度可以精确地选择工作波长。将光学参量振荡器内晶体表面反射出来的激光用光导管送到经过标定的光栅单色仪, 单色仪与光学多道分析仪连用, 实时读出探测光束的波长。

球隙开关和两只 KDP 的泡克尔 (Pockels) 开关在激发光脉冲序列和探测光脉冲序列中选出单脉冲。微微秒光脉冲由光二极管产生电信号送到有数字存贮的毫微秒示波器上, 后者外接电视荧光屏, 以便在整个实验过程中随时监视激光器的工作状态。

样品的激发采用双光子吸收, 它的优点是能得到较均匀的体内激发。激发的功率密度为  $10^8 \text{ W/cm}^2$ , 样品上光斑直径约 0.5 mm。相应的电子-空穴对等离子体密度为  $10^{17}/\text{cm}^3$ [4]。

两只光电倍增管分别测量探测光束在样品前后的强度, 经 A/D 变换送到计算机得出透过率的大小。

一台 HP9825 型计算机控制实验的操作, 并实时处理数据。众所周知, 被动锁模所得的微微秒脉冲起源于自发辐射, 故脉冲输出幅度不可避免地具有较大的起伏。为此在计算机的程序中, 给定一个一定大小的“窗口”, 以筛选激发光强合乎规格的实验数据。

### 三、结果与讨论

图 2 和图 3 是主要的实验结果。图 2 给出样品在激发前后不同时刻的吸收光谱, 图 3 为样品基态激子共振吸收 ( $n=1$ ) 的时间分辨光谱。

从图 2 可以看到, 大量的光生载流子使基态激子能级附近呈现显著的感应吸收。关于能量低于激子态部分的感应吸收以及增益, 已经有了较细致的测量和分析[4]。值得注意的是, 激发后延时 820 ps, 激子吸收已经重新出现, 但是激子吸收线宽还没有恢复到原来的水平。同时, 能量高于激子基态部分的感应吸收仍然存在。

从图 3 可以看到激子被屏蔽的形成与消失过程, 形成时间比文献[3]测出要长些, 因为我们使用的激光脉宽为 25 ps。800 ps 之后, 激子吸收基本上恢复到原来的水平, 也就是说此时库仑作用的屏蔽效应已经消失。如果按照习惯的做法, 我们也可以定义吸收恢复到原来的一半的时刻为屏蔽时间, 由图可得这个时间的大小为 600 ps。根据文献[4]的测量和分析, 电子-空穴对等离子体在激发后 250 ps, 等离子体的温度由 100 K 降到 40 K。粗略地说, 消屏蔽的时间与等离子体的弛豫时间相当。只要我们认为激子共振吸收的下降是由于被光激发热载流子所屏蔽, 上述结论是可以理解的。

Wannier 型激子轨道半径[8]

$$a_{ex}(n) = \frac{K}{\mu'} n^2 a_0, \quad (1)$$

其中  $n$  为量子数,  $K$  为介质的介电常数,  $\mu'$  为激子的相对约化质量,  $a_0$  是玻尔半径, 等于  $0.529 \text{ \AA}$ 。

当半导体材料吸收一定光子后形成密度为  $N$  的电子-空穴对等离子体时, 必须考虑载流子间的库仑作用[9]。此时点电荷的库仑势表示为

$$u(r) = \frac{e^2}{r} \exp(-\lambda r), \tag{2}$$

式中指数因子表示屏蔽的作用。通常  $\lambda$  称为屏蔽参量, 而其倒数  $l_0 = \lambda^{-1}$  称为屏蔽长度。由微扰理论给出

$$\lambda^2 = 4\pi e^2 N(\epsilon_F), \tag{3}$$

式中  $N(\epsilon_F)$  是费米能级处的态密度。对于半导体可以有

$$\lambda^2 = 4m e^2 N^{1/3} / \hbar^2 = 4N^{1/3} / a_0, \tag{4}$$

式中  $m, e$  为电子的质量与电荷,  $\hbar$  为普朗克常数。显然, 热载流子越多, 屏蔽长度就越短。Mott 认为, 金属内自由载流子的密度很高, 屏蔽长度小于晶格常数, 故不应存在严格意义下的激子。

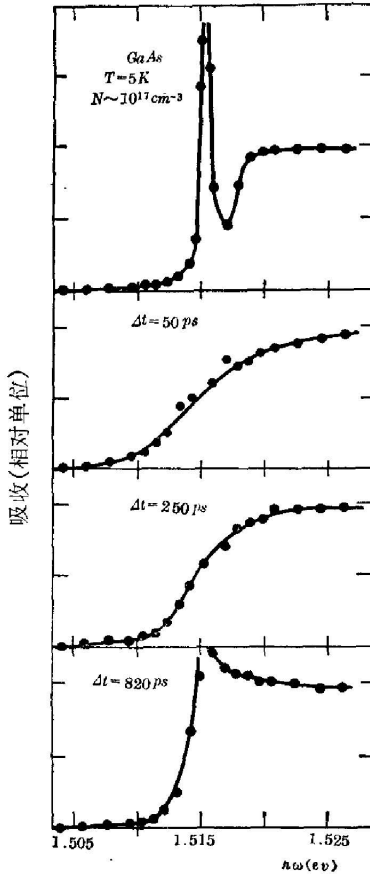


图2 不同延迟时间下 GaAs 样品的吸收谱

Fig. 2 Absorption spectra of the GaAs sample at various delay times

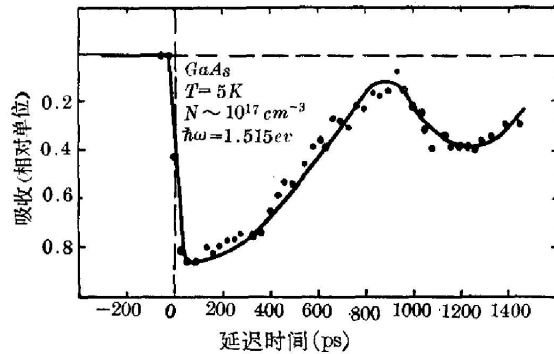


图3 强激发 GaAs 样品的激子共振吸收与时间关系

Fig. 3 Time behaviour of the excitonic resonant absorption in the high excited GaAs sample

强激发下的半导体, 其载流子密度虽然没有达到金属自由电子的密度那样高, 但只要光生电子-空穴对的密度  $N$  足够大, 使其屏蔽长度短于(1)式给出的激子轨道半径, 由于空穴无法“看见”自己的配偶电子, 激子即被屏蔽而消失。这就是从激子态到电子-空穴对等离子体的 Mott 相变。

由(1)、(4)式可以得出, 激子 Mott 相变所需的载流子密度远远低于绝缘体-金属相变所需的电子密度, 相差的因子为  $(2n^2 \frac{K}{\mu'})^6$ 。如果考虑基态激子,  $n=1$ , GaAs 中  $K=11, \mu'=0.5$ , 这个因子为  $7 \times 10^9$  量级。从这一点可以了解激子 Mott 相变容易发生, 并可预期光学双稳态器件中激子器件是有前途的, 但遗憾的是必须在低温下工作。

从上面的简单模型出发, 按照 Mott 相变的概念, 相变应该是跃变的。因为一旦电子-空穴等离子体的密度小于临界数值, 激子便应马上重新出现, 激子的共振吸收也应立即恢复

到原来的水平,换言之,理想的吸收时间谱应是方波。可是实验结果并非如此,从电子-空穴等离子体到激子态的转变是一个平缓的过程,看不出跃变的特征。这一结论与我们的 GaAs 强激发下的微微秒发光光谱所得的结论是一致的<sup>[10]</sup>。关于这个现象的解释有待于严格的激子与载流子相互作用的动力学理论。

最后,从图 3 还可以看到一个有趣的事实,即在激发后 1 ns,激子屏蔽效应已经消失,但又重新出现一个“透过”峰。不过,这次吸收的下降不是由于激子被屏蔽,而是由于激子被散射所致。我们的发光实验<sup>[10]</sup>证实了这一点,强激发下激子与自由载流子散射的发光要比电子-空穴对复合发光迟后几百个微微秒。

从我们的实验和分析来看,可以采用外延 GaAs 作为光学双稳态激子器件,其开关的极限时间是毫微秒量级。

## 四、结 论

我们以脉宽为 25 ps 的 1.06  $\mu\text{m}$  光脉冲作激发光源,用同步泵浦 LiNbO<sub>3</sub> 光学参量振荡器产生的可调谐光脉冲作探测光束,测量了 5 K 下 GaAs 外延薄片的激子吸收时间分辨光谱。从实验可以观察到,激子基态共振吸收被光激发热载流子屏蔽的时间约为 600 ps,与光激发电子-空穴对等离子体的弛豫时间相当。但在这一个从等离子体到激子态的 Mott 相变中,看不到一般相变所具有的突变的特征。此外,还观察到激子与电子散射所形成的第二个吸收中的“透过”峰。

作者感谢 Von der Linde 教授的支持和指导。

## 参 考 文 献

- [1] J. Shah, R. F. Leheny; *Phys. Rev. (B)*, 1977, **16**, No. 4 (15 Aug), 1577.
- [2] R. F. Leheny, J. Shah; *Solid State Electron.* 1978, **21**, No. 1 (Jan), 167.
- [3] C. V. Shank, R. L. Fork *et al.*; *Phys. Rev. Lett.* 1979, **42**, No. 2 (8 Jan), 112.
- [4] D. von der Linde, R. Lambrich; *Phys. Rev. Lett.*, 1979, **42**, No. 16 (15 Apr), 1090.
- [5] H. M. Gibbs, T. N. C. Ventatesan *et al.*; *A. P. L.*, 1979, **34**, No. 8 (15 Apr), 511.
- [6] H. M. Gibbs, S. L. McCall *et al.*; *A. P. L.*, 1979, **35**, No. 6 (15 Sep), 451.
- [7] E. P. Ippen, C. V. Shank, *«Ultrashort Light Pulses»*, Ed. by S. L. Shapiro; (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1977), 102.
- [8] D. L. Dexter, R. S. Knox; *«Excitons»*, (Interscience Publishers, John Wiley & Sons, New York, 1965).
- [9] J. M. Ziman; *«Principles of the Theory of Solids»*, (Cambridge University Press., 1964), 126.
- [10] E. O. Gobel, P. H. Liang *et al.*; *Solid State Commun.*, 1981, **37**, No. 8 (Feb), 609.

## Picosecond absorption spectra of excitons in GaAs

LIANG PEIHUI (P. H. LIANG)\*

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

R. LAMBRICH\*\*

(Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Stuttgart, F. R. G.)

(Received 28 July 1981)

### Abstract

Recently the screened effect of resonance excitons absorption in GaAs has been applied to develop some kinds of optical bistability devices, therefore to measure the ultra-fast excitons screened process induced by photoexcited hot carriers is of importance not only for semiconductor physics but also for its applications.

We measured the time-resolved spectrum of some GaAs samples at 5 K by means of the exciting-probing method of picosecond spectroscopy. In our experiment the single laser pulse with duration time of 25 ps at  $1.06 \mu\text{m}$  was used as exciting beam, and the probing beam was from a synchronously pumping optical parametric oscillator whose output wavelength was tuned by temperature. The main results are as following:

- (1) The screened time of excitons in GaAs is about 600 ps at 5 K.
- (2) Another transparent peak which comes from the scattering of excitons emerges at 1 ns after the excitation.
- (3) The transition from electron-hole-plasma to the excitonic state (Mott transition) has not seen to be abrupt.

---

\* The experimental work was carried out at Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Stuttgart, F. R. Germany; One of the authors (Liang) is indebted to the Alexander-von-Humboldt Foundation for a research fellowship.

\*\* Present address: Dräg Company, Lübeck, F. R. Germany.