

负电子亲和势 GaAs 光电阴极中的三光子激发和发射的理论研究*

王力鸣 侯 洵

(中国科学院西安光学精密机械研究所, 西安 710068)

提 要

将三阶微扰理论应用于单晶 GaAs 半导体, 结合与实际相接近的能带结构, 得到了 GaAs 中三光子吸收系数的解析式表达式, 在考虑了激发电子的逃逸过程的情况下, 进而推导了负电子亲和势 GaAs 光电阴极中三光子光电发射的发射系数的解析表达式。两表达式得到的理论数值分别与用 ns 量级脉宽、2.06 μm 波长的激光测得的 GaAs 中三光子吸收系数和 GaAs(Cs, O) 光电阴极中三光子发射系数的实验值相比较, 吻合较好。

关键词: 三阶微扰理论, 三光子吸收系数, 三光子光电发射系数, GaAs 半导体。

一、引 言

固体中的多光子光电发射效应在用于研究固体的能带结构、光场的统计性质, 光波导中导波和消逝波的传播特性等均有其独到之优点^[1~3]。它还可以被用于扩展光电阴极的光谱响应范围等^[4, 5]。因而被广泛地研究。以往绝大多数固体中的多光子光电发射的理论和实验研究都是针对金属建立和进行的^[1, 6], 尽管其中一些实验研究是在半导体样品上进行的^[7, 8], 但在半导体材料中的多光子光电发射的理论研究到目前为止还很缺乏^[1, 2]。

作者曾经报道过利用调 Q Er、Tm、Ho:YLF 激光器输出的 ns 量级、2.06 μm 脉冲激光作激发源, 对 GaAs(Cs, O) 光电阴极中的三光子光电发射进行的系统研究^[9, 10]。为了对这些实验现象作出相应机理上的解释, 本文先用三阶微扰理论和简化能带模型推导有关表达式, 并将得到的计算结果与实验测量值相比较。

二、GaAs 中的三光子吸收

1. 三阶微扰理论

当入射光子能量小于直接带半导体的禁带宽度时, 电子的激发过程是多光子吸收过程。它可以用 n 阶含时微扰理论来推导。由三阶微扰理论得到: 单晶固体中一个电子同时吸收三个频率为 ω , 且满足 $2\hbar\omega < E_g < 3\hbar\omega$ 的光子, 从作为初态的价带 v 到作为末态的导带 c 的直接跃迁的跃迁几率表达式为^[11]

收稿日期: 1991年2月12日; 收到修改稿日期: 1991年5月28日

* 国家自然科学基金会资助的项目。

1.806 eV 相应于在测量时使用的 $2.06 \mu\text{m}$ 激光产生的三光子激发的能量 $3\hbar\omega$ ($\hbar\omega=0.602$ eV)。可以看到, 这些激发总是发生在 Γ 点附近。这样在计算中可使用如图 2 所示的能带模型, 它是以 Kane 用 $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ 法求得的能带结构为基础得到的^[13]。其中 \mathbf{k} 点能级 i 和能级 j 之间能量差为抛物线型各向同性的能带结构

$$\left. \begin{aligned} E_{ij}(\mathbf{k}) &= E_{ij}(0) + (\hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m_{ij}^*), \\ (m_{ij}^*)^{-1} &= (m_i^*)^{-1} + (m_j^*)^{-1}, \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

式中 m_i^* 、 m_j^* 为 i 、 j 能带电子的有效质量。为提高计算精度, 在计算中可以采用非抛物线能带结构(根据 Vaidyanathan 等人的研究^[14])

$$E_{ij}(\mathbf{k}) = E_{ij}(0) [1 + (\hbar \mathbf{k} / m_{ij}^* E_{ij}(0))]^{1/2}. \quad (4)$$

3. 三光子吸收系数的解析表达式

三光子吸收系数 α_3 的唯象定义是由广义 Beer-Lambert 定律所定义

$$(dI/dx) = -\alpha_3 I^3, \quad (5)$$

式中 α_3 为三光子吸收系数, I 为光强度, x 为沿光传播方向的长度。三光子跃迁几率 w_3 与三光子吸收系数 α_3 有一简单关系

$$\alpha_3 = 2 w_3 (3\hbar\omega / I^3), \quad (6)$$

因子 2 是计入了电子自旋简并引入的。在由 (3) 式决定的抛物线能带结构的情况下, 经简单推导 (2) 式变为

$$\left. \begin{aligned} w_3 &= \frac{1}{2\pi\hbar} \left(\frac{2m_{vc}^*}{\hbar^3} \right)^{3/2} (3\hbar\omega - E_g) \left(\frac{eA_0}{mc} \right)^6 \cdot \left| \sum_n \sum_m \frac{P_{vm} P_{mn} P_{nc}}{Q \cdot S} \right|^2 \\ &\quad \left. \begin{aligned} (Q &= [E_{mv}(0) - \hbar\omega + (m_{vc}^*/m_{mv}^*)(3\hbar\omega - E_g)]) \\ (S &= [E_{mn}(0) - 2\hbar\omega + (m_{vc}^*/m_{mn}^*)(3\hbar\omega - E_g)]) \end{aligned} \right\} \quad (7) \\ P_{mn} &= \int u_m^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) p_e u_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad p_e = (\mathbf{A}_0 \cdot \mathbf{p}), \end{aligned}$$

式中 P_{mn} 为动量矩阵元, $u_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})$ 为第 n 能带 Bloch 波函数的调幅函数, p_e 为 \mathbf{p} 在 \mathbf{A} 方向的投影, \mathbf{A}_0 为 \mathbf{A} 方向上的单位矢量, P_{mn} 可以通过 $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ 法表为有效质量和带隙的函数^[15]

$$P_{mn}^2 = m E_{mn} / 4 m_{mn}^* \quad (8)$$

由于

$$I = (A_0^2 \sqrt{\epsilon_\infty} \omega^2 / 2\pi c), \quad (9)$$

及 (6) 式, 三光子吸收系数可表为

$$\alpha_3^P(\omega) = \frac{24\pi^2 (2m_{vc}^*)^{3/2} e^6 \pi^2}{\epsilon_\infty^{3/2} m^6 c^3} \frac{(3\hbar\omega - E_g)^{1/2}}{(\hbar\omega)^5} |R^P|^2, \quad (10)$$

$$\left. \begin{aligned} R^P &= \sum_n \sum_m \frac{P_m P_{mn} P_{nc}}{Q \cdot S} \\ (Q &= [E_{mv}(0) - \hbar\omega + (m_{vc}^*/m_{mv}^*)(3\hbar\omega - E_g)]) \\ (S &= [E_{mn}(0) - 2\hbar\omega + (m_{vc}^*/m_{mn}^*)(3\hbar\omega - E_g)]) \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

由于动量矩阵元通常为复数, R^P 可写成

$$R^P = \sum_n \sum_m r_{mn} \exp(i\theta_{mn}), \quad (12)$$

式中 θ_{mn} 在物理意义上是由入射光的偏振方向 \mathbf{A}_0 和电子动量方向 \mathbf{e} 的相对方位决定的。当不考虑光的偏振造成的影响, $|R^P|^2$ 的值为在所有方向上的平均, 其最终结果为:

$$|R^P|^2 = \sum_n \sum_m r_{mn}^2 \quad (13)$$

结合(8)式, $|R^P|^2$ 可以表为

$$\left. \begin{aligned} |R^P|^2 &= \sum_n \sum_m \frac{m^6}{64 m_{vm}^* m_{mn}^* m_{nc}^*} \cdot \frac{E_{nm} E_{mn} E_{nc}}{Q \cdot S} \\ \left(\begin{aligned} Q &= [E_{mv}(0) - \hbar\omega + (m_{vc}^*/m_{mv}^*)(3\hbar\omega - E_g)]^2 \\ S &= [E_{mn}(0) - 2\hbar\omega + (m_{vc}^*/m_{mn}^*)(3\hbar\omega - E_g)]^2 \end{aligned} \right) \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

同理, 对于由(4)式决定的非抛物线型能带结构有

$$\alpha_3^{nP}(\omega) = \frac{72 \pi e^6 (m_{vc}^*)^3 / \hbar |R^n|^2}{m^6 c^6 \varepsilon_g^{3/2} E_\infty^{3/2}} \cdot \frac{[(3\hbar\omega)^2 - E_g^2]^{1/2}}{(\hbar\omega)^4}, \quad (15)$$

$$\left. \begin{aligned} |R^n|^2 &= \sum_n \sum_m \frac{m^6}{64 m_{vm}^* m_{mn}^* m_{nc}^*} \cdot \frac{E_{vm} E_{mn} E_{mc}}{Q \cdot S} \\ \left(\begin{aligned} Q &= \left[E_{mv}(0) \left(1 + \frac{m_{vc}^* [(3\hbar\omega)^2 - E_g^2]^{1/2}}{m_{mv}^* E_{mv}(0) E_g} \right) - \hbar\omega \right]^2 \\ S &= \left[E_{mn}(0) \left(1 + \frac{m_{vc}^* [(3\hbar\omega)^2 - E_g^2]^{1/2}}{m_{mn}^* E_{mn}(0) E_g} \right) - 2\hbar\omega \right]^2 \end{aligned} \right) \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

三、负电子亲和势 GaAs 光电阴极中三光子光电发射

1. 半导体中的多光子光电发射

设负电子亲和势阴极为反射式, 占据 $x > 0$ 半空间, 阴极表面与 Y 、 Z 平面重合。入射光系频率为 ω 的单色平面电磁波, 其频率满足

$$(n-1) < (E_g/\hbar\omega) < n, \quad (17)$$

式中 E_g 为禁带宽度, n 为大于 1 的整数。设半导体中通过 n 光子吸收过程产生的导带电子的密度为 N_e ; 位于 x 处的电子的逃逸几率为 $p(x)$ 那么当达到稳态时, n 光子发射的光电流密度为

$$J_n = e \int_0^\infty (dN_e/dt) p(x) dx. \quad (18)$$

若 N_{Ph} 为光子数密度, 那么

$$I = (c/\sqrt{\varepsilon_\infty}) \hbar\omega N_{Ph}, \quad (19)$$

结合(5)式可以得到单位体积内对光子的吸收速率为

$$(dN_{Ph}/dt) = -(\alpha_n/\hbar\omega) I^n = -n(dN_e/dt), \quad (20)$$

代入(18)式, 可得 $n=3$ 时

$$J_3 = \frac{e}{3\hbar\omega} \int_0^\infty \alpha_3 I^3(x) p(x) dx. \quad (21)$$

2. 激发电子的逃逸几率

阴极中激发电子向真空的逃逸过程在微观上是一个复杂的过程, 激发电子无论在向表面迁移过程还是在阴极表面弯带区附近的表面发射过程, 都会经历各种散射、加速、复合等随机过程。电子经迂回曲折的路径, 能量不断交换给晶格等, 最终只有少部分逃逸出表面。通常计算中唯象地采用逃逸几率表达式。

已知阴极中电子的逃逸深度 d , 那么距表面 x 处产生的激发电子的逃逸几率为

$$p(x) = \exp(-x/d), \quad (22)$$

d 值的大小与阴极材料的表面和体特性有关。

3. 三光子光电发射的解析表达式

将(22)式、(10)式或(15)式分别代入电流(21)式, 得到在抛物线能带结构和非抛物线能带结构下, GaAs 光电阴极中三光子光电发射的解析表达式分别为

$$J_3^P = \frac{8 \pi e^7 d (2 m_{vc}^*)^{3/2} \hbar^2 |R^P|^2}{\epsilon_\infty^{3/2} m^6 c^3} \cdot \frac{(3 \hbar \omega - E_g)^{1/2}}{(\hbar \omega)^6} I^3, \quad (23)$$

$$J_3^{nP} = \frac{12 \pi e^7 d (m_{vc}^*)^{3/2} \hbar^2 |R^n|^2}{\epsilon_\infty^{3/2} m^6 c^3 E_g^{3/2}} \cdot \frac{[(3 \hbar \omega)^2 - E_g^2]^{1/2}}{(\hbar \omega)^5} I^3, \quad (24)$$

式中 $|R^P|^2$ 和 $|R^n|^2$ 分别由(14)和(16)式确定, 这样, 负电子亲和势 GaAs 光电阴极的三光子光电发射系数在两种能带结构下的解析表达式分别为

$$\gamma_3^P(\omega) = \frac{8 \pi^2 e^7 d (2 m_{vc}^*)^{3/2} \hbar^2 |R^P|^2}{\epsilon_\infty^{3/2} m^6 c^3} \frac{(3 \hbar \omega - E_g)^{1/2}}{(\hbar \omega)^6}, \quad (25)$$

$$\gamma_3^{nP}(\omega) = \frac{12 \pi^2 e^7 d (m_{vc}^*)^{3/2} \hbar |R^n|^2}{\epsilon_\infty^{3/2} m^6 c^3 E_g^{3/2}} \frac{[(3 \hbar \omega)^2 - E_g^2]^{1/2}}{(\hbar \omega)^5}. \quad (26)$$

四、数值计算结果与实验值的比较

1. GaAs 中的三光子吸收系数

将图 2 中的能带结构及其参数分别代入(10)和(15)式, 可以分别得到在抛物线能带结构和在非抛物线能带结构下 GaAs 中的三光子吸收系数的数值, 不同的光子能量给出其色散曲线, 如图 3 所示。图中还给出了由 Keldysh 的任意阶多光子吸收系数公式在 $n=3$ 时的色散曲线^[16]。发现, 虽然 Keldysh 公式得到的数值比起用微扰理论得到的数值相差近一个量级, 但三条曲线的基本特征非常相似。

图 3 中“+”为用 ns 量级的 $2.06 \mu\text{m}$ ($0.602 \text{ eV}/\text{photon}$) 激光脉冲作激光源, 利用非线性

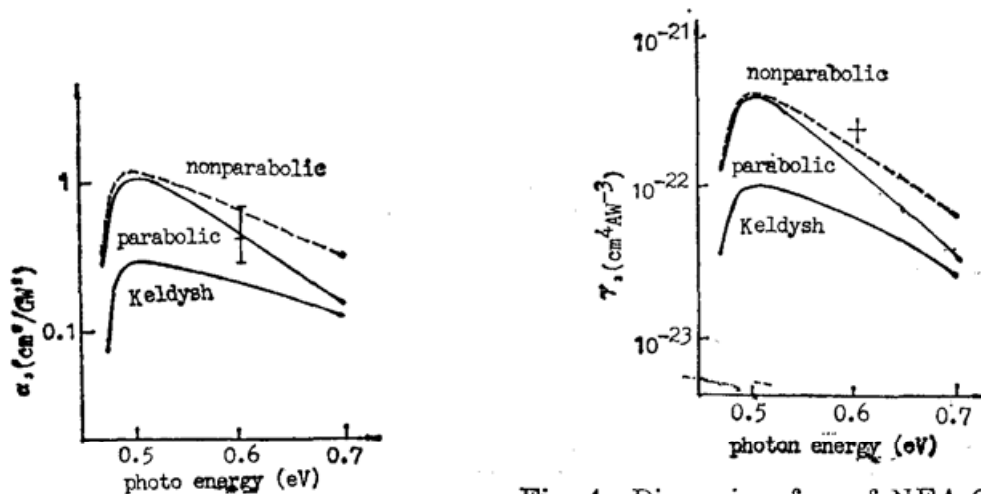


Fig. 3 Dispersion of α_3 of GaAs. + is experimental value. The laser wavelength is $2.06 \mu\text{m}$

Fig. 4 Dispersion of γ_3 of NEA GaAs photocathode. + is experimental value. The sensitivity of photocathode is $450 \mu\text{A}/\text{lm}$. The laser wavelength is $2.06 \mu\text{m}$.

性透过率法测得的 GaAs 三光子吸收系数值。为便于比较,把这一波长下的理论计算值和实验值分别列于表 1 中。

Table 1 Comparison of theoretical and experimental three-photon absorption coefficients in GaAs crystal at wavelength of $2.06 \mu\text{m}(\text{cm}^3/\text{GW}^2)$

Theoretical		Keldysh	Experimental
Three-order perturbation theory			0.40
Parabolic	Nonparabolic		
0.42	0.67	0.24	

2. 负电子亲和势 GaAs 光电阴极中的三光子光电发射系数

对于负电子亲和势 GaAs 光电阴极,通常可以认为激发电子的逃逸深度 $d=5 \mu\text{m}$ 。将图 2 中的能带结构及其参数和 d 值分别代入(25)、(26)式,得到在抛物线和非抛物线能带结构下负电子亲和势 GaAs 光电阴极中三光子光电发射系数的数值。图 4 给出了其色散曲线。图中“+”为用 ns 量级的 $2.06 \mu\text{m}$ ($0.602 \text{ eV}/\text{photon}$) 激光脉冲作激光源,在 GaAs(Cs, O)光电阴极上测得的实验数据。阴极是以标准方法用 Cs, O_2 在 MOCVD 外延生长的 $p\text{-GaAs}$ 上激活成的^[17]。其积分灵敏度为 $450 \mu\text{A}/\text{lm}$ 。为便于比较,把这一波长下的理论值和实验值列于表 2 中。

Table 2 Comparison of theoretical and experimental three-photon photoemission coefficients in GaAs photocathode at wavelength of $2.06 \mu\text{m}(\text{cm}^4 \text{AW}^{-3})$

Theoretical		Keldysh	Experimental
Three-Order perturbation theory			6.60×10^{-23}
Parabolic	Nonparabolic		
1.27×10^{-22}	1.77×10^{-22}		

五、结 论

把三阶微扰理论应用于 GaAs 晶体,并且假设(1)能带为抛物线和非抛物线型的五能带结构,而这种结构比前人使用的二能带或三能带结构更接近实际情况,因而也具有更好的精度;(2)能级之间的跃迁为选择定则所允许的,并且动量矩阵元通过 $k \cdot p$ 微扰法求得;(3)入射光为非线偏光;以及(4)受激光电子的逃逸几率为以逃逸深度为特征量的随 ω 呈负指数分布的函数,分别推导出了 GaAs 晶体中的三光子吸收系数 $\alpha_3(\omega)$ 和负电子亲和势 GaAs 光电阴极的三光子光电发射系数 $\gamma_3(\omega)$ 的解析表达式。数值计算给出的 α_3 和 γ_3 的色散曲线显示出本文得到的值与用 Keldysh 的理论得到的 α_3 、 γ_3 值的相似性,其机理仍有待研究。在 $2.06 \mu\text{m}$ 波长处的理论值与实验值相比较,两者吻合较好,说明尽管本文的推导作了诸多简化假设,但仍抓住了过程的物理实质。

感谢北京大学吴全德教授、吴锦雷副教授的有益讨论;高洪楷、龚平等同志为实验提供

了 MOCVD 外延片;感谢程昭同志在测量中给予的协作。

参 考 文 献

- [1] A. Kasuya, Y. Nishina; *Japan J. Appl. Phys.*, 1981, **20**, No. 1 (Jan), L63.
- [2] P. P. Barashov; *Phys. Stat. Sol. (a)*, 1972, **9**, No. 7 (Jul), 9.
- [3] G. A. Massey, M. D. Janes *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1981, **QE-17**, No. 6 (Jun), 1035.
- [4] M. Berndt, H. Franke *et al.*; *Phys. Stat. Sol. (a)*, 1970, **1**, No. 3 (Mar), K95.
- [5] M. Y. Shelev; *Proc. SPIE*, 1982, Vol. 348, 75.
- [6] R. Yen, J. Lin *et al.*; *Opt. Commun.*, 1980, **35**, No. 12 (Dec), 277.
- [7] E. M. Logothetis, P. L. Hartman; *Phys. Rev.*, 1969, **187**, No. 2 (Nov), 46.
- [8] W. J. Siekhaus, J. H. Kinny *et al.*; *Appl. Phys. (A)*, 1986, **39**, No. 4 (Apr), 163.
- [9] Liming Wang, Xun Hou *et al.*; *Proc. SPIE*, 1991, Vol. 1358, 1358-86.
- [10] Liming Wang, Xun Hou *et al.*; *Proc. SPIE*, 1991, Vol. 1415, 1415-12.
- [11] V. Nathan, A. H. Guenther *et al.*; *J. O. S. A. (B)*, 1985, **2**, No. 2 (Feb), 294.
- [12] M. L. Cohen, T. K. Bergstresser; *Phys. Rev.*, 1966, **141**, No. 7 (Jul), 789.
- [13] E. O. Kane; *J. Phys Chem. Solids*, 1957, **1**, No. 1 (Jan), 249.
- [14] 方俊鑫, 陆 栋;《固体物理》,上册,(上海科学技术出版社,上海,1980), 256.
- [15] A. Vaidyanathan, T. Walker *et al.*; *Phys. Rev. (B)*, 1980, **21**, No. 10 (Oct), 743.
- [16] L. V. Keldysh; *J. Eskp. Teor. Phys.*, 1964, **47**, No. 10 (Oct), 1945.
- [17] L. V. Keldysh; *Sov. Phys. JETP*, 1965, **20**, No. 8 (Aug), 1307.
- [17] R. L. Bell; «Negative Electron Affinity Devices», (Oxford University Press, Oxford, 1973).

Theoretical study on three-photon excitation and photoemission on a negative electron affinity (NEA) GaAs photocathode

WANG LIMING AND HOU XU

(Xi'an Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, P.O.Box 80, Xi'an 710068)

(Received 12 February 1991; revised 28 May 1991)

Abstract

Three-order perturbation theory is used for the study of monocrystalline GaAs. Under an assumption of a simplified but more realistic band structure of GaAs crystal, formulas of three-photon absorption coefficient are obtained. And further more, after the escape process of an excited electron being considered, formulas of three-photon photoemission coefficient on a NEA GaAs photocathode are derived. The comparisons of theoretical calculated values with experimental ones are given. The experimental values are obtained by using a $2.06\mu\text{m}$ ns pulse Q-switched laser. The theoretical values fit the experimental ones satisfactorily.

Key words: three-order perturbation theory; three-photon absorption coefficient; three-photon photoemission coefficient; GaAs semiconductor; negative electron affinity GaAs photocathode.