

GaAs 半导体中三光子吸收系数的光学测量

程 昭 徐大纶 王力鸣* 侯 洵

(中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学技术实验室, 西安 710068)

提 要

本文首次报道了采用非线性光透射技术(NLT) 测量 $\lambda=2.06 \mu\text{m}$ 激光激发下 GaAs 本征半导体中三光子吸收的实验研究。观察到了三光子吸收及所伴随的自由载流子的激发态吸收, 并测得了三光子吸收系数。实验测量结果与理论计算结果比较, 符合较好。

关键词: 三光子吸收, 非线性光透射技术。

一、引 言

半导体材料中多光子吸收(MPA)过程, 由于其在非线性吸收及固体物理基础研究中, 尤其在获取有关能带结构新信息方面的作用, 而日益受到人们的广泛重视^[1]。目前, 多光子吸收过程已成功地用于半导体激光介质的粒子数反转, 它与单光子泵浦相比, 能使泵浦光强在介质内有一均匀的渗透, 而不是仅在表面。多光子吸收也能在激光腔内作为一种负反馈元件以控制激光脉冲的强度和宽度; 在超短激光脉冲与半导体相互作用过程的研究方面, 多光子吸收也是一种非常有效的非线性光谱技术。目前, 国外在这方面进行了大量的研究, 而国内却很少报道。尤其是对于 GaAs 半导体中三光子吸收系数的测量, 国内外都未见报道。

二、实验测量原理

在考虑三光子吸收及线性吸收的情况下, 由 Beer Lambert 定律:

$$\frac{\partial I}{\partial x} = -\alpha_1 I - \alpha_3 I^3, \quad (1)$$

对于高斯分布的光脉冲

$$I = I_0(x) \exp(-r^2/r_0^2 - t^2/\tau_0^2), \quad (2)$$

其中 $I_0(x)$ 为光斑中心最大光强, r_0 为光斑半径, $\tau_0 = \tau_L/2\sqrt{\ln 2}$ (τ_L 为激发光脉冲宽度), 可得到透射光强 I_{out} 、透射能量 E_{out} 和入射能量 E_{in} 分别为

$$I_{out}(r, t) = (1-R)e^{-\alpha_1 L} \sqrt{\frac{\alpha_3}{\alpha_1} (1 - e^{-2\alpha_1 L}) + \frac{\exp\left[2\left(\frac{r}{r_0}\right)^2 + 2\left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2\right]}{I_{in}^2 (1-R)^2}}, \quad (3)$$

收稿日期: 1991年4月30日; 收到修改稿日期: 1991年6月16日

* 现在中山大学激光与光谱学研究所, 广州 510275

$$E_{\text{out}} = \int_0^{\infty} 2\pi r dr \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{out}}(r, t) dt, \quad (4)$$

$$E_{\text{in}} = \int_0^{\infty} 2\pi r dr \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{in}} \exp[-(r/r_0)^2 - (t/\tau_0)^2] dt = I_{\text{in}} \pi^{3/2} r_0^2 \tau_0, \quad (5)$$

由(4)式和(5)式得到能量透过率:

$$T = \frac{E_{\text{out}}}{E_{\text{in}}} = \frac{4(1-R)e^{-\alpha_1 L}}{\sqrt{\pi} r_0^2 \tau_0} \int_0^{\infty} r dr \cdot \int_0^{\infty} \frac{dt}{\sqrt{\frac{\alpha_3}{\alpha_1} (1 - e^{-2\alpha_1 L}) I_{\text{in}}^2 + \frac{\exp[2(r/r_0)^2 + 2(t/\tau_0)^2]}{1 - R^2}}} \quad (6)$$

在低光强下,可以得到

$$\lim_{I_{\text{in}} \rightarrow 0} T = (1-R)^2 e^{-\alpha_1 L}, \quad (7)$$

$$\lim_{I_{\text{in}} \rightarrow 0} \frac{d\left(\frac{1}{T}\right)}{d(I_{\text{in}}^2)} = \frac{\sinh(\alpha_1 L)}{3^{3/2} \alpha_1} \cdot \alpha_3. \quad (8)$$

由(7)式可以得到 α_1 , 由(8)式可求得 α_3 .

三、实验装置与测量方法

测量 GaAs 半导体中三光子吸收的 NLT 非线性透射技术的实验装置如图 1 所示。激发光源为 $\lambda = 2.06 \mu\text{m}$, 脉冲宽度 $\tau = 80 \text{ ns}$ 的转镜调 Q YLF 激光器。激光脉冲经两次分束照射到半导体样品上。分束镜 BS_1 用于记录 $2.06 \mu\text{m}$ 激光脉冲能量的空间分布。YLF 脉冲激光器经透镜 L_1 聚束以后, 照射在位于 W 处的红外记录介质蜡膜上, 这样膜上就记录得到激光光斑的红外图像^[3]。利用图 2 所示的装置, 一个基模工作的 He-Ne 激光器经透镜 L_1 和 L_2 扩束后, 照射在记录有红外图像的蜡膜 O 上。被可见光照明的红外像经透镜 L_3 和 L_4 成像后, 在屏幕 I 上得到放大的可见光再现图像。然后用显微密度计沿一轴线扫描再现像底片的黑度分布, 经 γ 校正后, 得到蜡膜所记录的激光光斑沿该轴线的能量分布情况, 基本上呈高斯分布。分束镜 BS_2 用于测量不同光强下的能量透过率。经 BS_2 分束的光, 一路用能量计 ED_1 探测, 另一路经透镜 L_2 聚束照射厚度为 0.43 mm 的高纯高阻 GaAs 半导体样品, 并同时用能量计 ED_2 测其透射光。滤光片 F 滤掉泵浦灯的杂散光。用衰减片 A 改变激光光强。在不同光强下, 测量样品的透射光, 从而给出不同光强下的能量透过率。

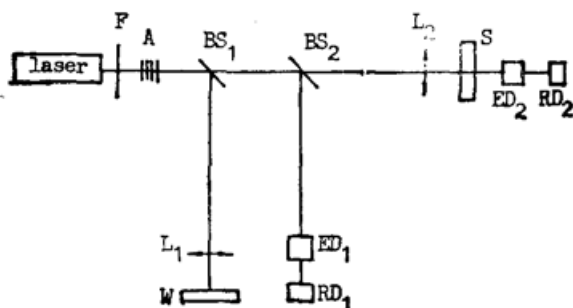


Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup for NLT measurement of three-photon absorption

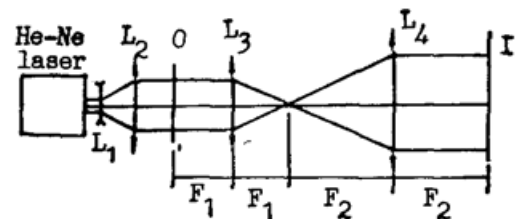


Fig. 2 Schematic diagram of experimental setup to reconstruct the IR image on wax film with He-Ne laser light

四、实验结果及讨论

图3为在低光强下,所测得的透过率的倒数与光强平方的关系曲线。由此曲线及公式(8),在 $\alpha_1 L \ll 1$ 时,可求得 $\alpha_3 = 0.48 \text{ cm}^3/\text{GW}^2$,由于在低能量下测量误差很大,使得实验点比较弥散,所得到的 α_3 只是一个估计数。

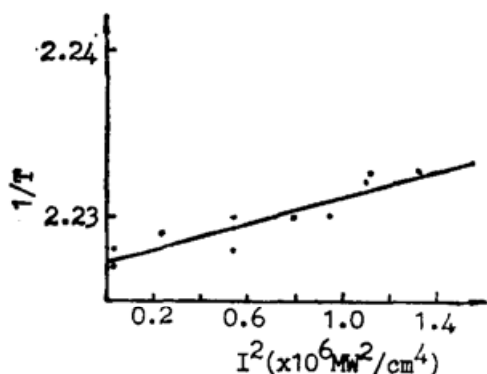


Fig. 3 Reciprocal transmittance as a function of the square of incident intensity

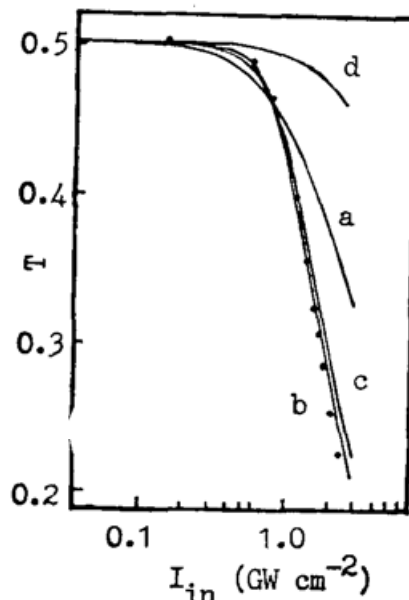


Fig. 4 Energy transmittance as a function of incident laser intensity

本文还测量了能量透过率随入射光强变化的关系曲线。图4中的实点即为实验所测得的数据。在仅考虑三光子吸收的情况下,计算了三光子吸收系数 $\alpha_3 = 4 \text{ cm}^3/\text{GW}^2$ 及 $\alpha_3 = 40 \text{ cm}^3/\text{GW}^2$ 时,透过率随光强变化的理论曲线,如图4中曲线(d)及曲线(a)所示。可以看出:三光子吸收系数越大,透过率随光强的增大而衰减越快。实验所测得的透过率曲线与纯三光子吸收的理论曲线相比,在强光强下(大约大于 $0.6 \text{ GW}/\text{cm}^2$)衰减的更快。因此,只用三光子吸收过程是不可能解释的。所以,考虑了电子和空穴的激发态单光子吸收。

伴随有激发态吸收的三光子吸收过程满足如下 Beer Lambert 定律:

$$\frac{\partial I(r, t, x)}{\partial x} = -\alpha_3 I^3(r, t, x) - \alpha_{ex} I(r, t, x). \quad (9)$$

式中 α_{ex} 为激发态吸收系数。已知:

$$\alpha_{ex} = 2N_{ex}\sigma_{ex}, \quad (10)$$

σ_{ex} 为吸收截面, N_{ex} 为三光子吸收过程所产生的载流子浓度。在忽略了电子和空穴的复合时, N_{ex} 由下式给出:

$$N_{ex}(r, t, x) = -\frac{1}{3\hbar\omega} \frac{\partial}{\partial x} \int_{-\infty}^t I(r, t', x) dt'. \quad (11)$$

当 $\sigma_{ex} \rightarrow 0$ 时,由(9)式得到:

$$I(r, t, x) = I(r, t, 0) [1 + 2\alpha_3 x I^2(r, t, 0)]^{-1/2}, \quad (12)$$

当 σ_{ex} 不可忽略时,(9)式为一复杂的非线性耦合差分方程,可近似求解。将(12)式代入(11)式,得

$$N_{ex}(r, t, x) = -\frac{1}{3\hbar\omega} \frac{\partial}{\partial x} \int_{-\infty}^t I(r, t', 0) [1 + 2\alpha_3 x I^2(r, t', 0)]^{-1/2} dt'. \quad (13)$$

由 $\frac{\partial I(r, t, x)}{\partial x} = -2\sigma_{ex} N_{ex} I(r, t, x)$ 得:

$$I(r, t, x) = I(r, t, 0) \exp\left[-2\sigma_{ex} \int_0^x N_{ex}(r, t, x') dx'\right]. \quad (14)$$

将(14)式的衰减系数引入(12)式得:

$$I(r, t, x) = I(r, t, 0) [1 + 2\alpha_3 x I^2(r, t, 0)]^{-1/2} \exp\left[-2\sigma_{ex} \int_0^x N_{ex}(r, t, x') dx'\right]. \quad (15)$$

这样可得到能量透过率:

$$T = \frac{E_{out}}{E_{in}} = \int_0^{\infty} 2\pi r dr \int_{-\infty}^{\infty} I(r, t, L) (1-R) dt / \int_0^{\infty} 2\pi r dr \int_{-\infty}^{\infty} I_0(r, t) dt. \quad (16)$$

对高斯输入脉冲, 由(5)式, 最后得到:

$$\begin{aligned} T &= \frac{2}{\sqrt{\pi}} (1-R)^2 \int_0^{\infty} r dr \int_{-\infty}^{\infty} e^{-r^2-t^2} [1 + 2\alpha_3 I_{in}^2 e^{-2r^2-2t^2} L(1-R)^2]^{-1/2} \\ &\quad \times \exp\left\{-\frac{2\sigma_{ex}\tau_0}{3\hbar\omega} \int_{-\infty}^t I_{in}(1-R) e^{-r^2-t'^2}\right. \\ &\quad \left. \times [1 - (1 + 2L\alpha_3 I_{in}^2 (1-R)^2 e^{-2r^2-2t'^2})^{-1/2}] dt'\right\} dt. \end{aligned} \quad (17)$$

在不同的 α_3 及 σ_{ex1} (电子、空穴的激发态单光子吸收截面)下, 通过数值积分计算, 由上式可得到透过率随入射光强变化的关系曲线。图4中绘出了 $\alpha_3 = 0.4 \text{ cm}^3/\text{GW}^2$, $\sigma_{ex1} = 4.8 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ 的理论拟合曲线(c)。

同样, 在考虑了激发态双光子吸收的情况下, 有

$$\begin{aligned} T &= \frac{2}{\sqrt{\pi}} (1-R)^2 \int_0^{\infty} r dr \int_{-\infty}^{\infty} e^{-r^2-t^2} [1 + 2\alpha_3 I_{in}^2 e^{-2r^2-2t^2} L(1-R)^2]^{-1/2} \left\{ 1 \right. \\ &\quad \left. + \frac{2\sigma_{ex}^2\tau_0}{3(\hbar\omega)^2} I_{in} e^{-r^2-t^2} (1-R) \int_{-\infty}^t I_{in} e^{-r^2-t'^2} (1-R) \right. \\ &\quad \left. \times [1 - [1 + 2\alpha_3 L I_{in}^2 e^{-2r^2-2t'^2} (1-R)^2]^{-1/2}] dt'\right\} dt. \end{aligned} \quad (18)$$

在同时考虑激发态单光子和双光子吸收时, 由(15)和(18)式, 在不同的 α_3 、 σ_{ex1} 、 σ_{ex2} 下, 通过数值计算, 可得到入射光强与透过率的关系曲线。图4中绘出了 $\alpha_3 = 0.4 \text{ cm}^3/\text{GW}^2$, $\sigma_{ex1} = 2.9 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$, $\sigma_{ex2} = 1.2 \times 10^{-46} \text{ cm}^4\text{s}$ 的理论拟合曲线(b)。

由图4可以看出: 透过率随光强而急剧减小, 主要是由三光子吸收产生电子和空穴的激发态单光子及双光子吸收所引起的。这种激发态吸收只在强光强下(大约大于 $0.6 \text{ GW}/\text{cm}^2$)才表现出来。实验测量曲线与三光子吸收系数 $\alpha_3 = 0.4 \text{ cm}^3/\text{GW}^2$ 及电子、空穴的激发态单、双光子吸收截面 $\sigma_{ex1} = 2.9 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ 、 $\sigma_{ex2} = 1.2 \times 10^{-46} \text{ cm}^4\text{s}$ 的理论计算曲线拟合较好。因此, 从实验曲线与理论拟合曲线可以看出: 在波长 $\lambda = 2.06 \mu\text{m}$ 的激光激发下, GaAs 半导体材料的三光子吸收系数 $\alpha_3 = 0.4 \text{ cm}^3/\text{GW}^2$ 。这与文献[2]在四能带理论模型下得到的理论计算值 $\alpha_3 = 0.427 \text{ cm}^3/\text{GW}^2$ 相比较, 结果符合较好。

参 考 文 献

- [1] Vaidya Nathan, A. H. Guenther *et al.*; *J. O. S. A. (B)*, 1985, **2**, No. 2, (Feb), 294.
[2] S. S. Mitra, N. H. K. Judell *et al.*; *Opt. Lett.*, 1982, **7**, No. 7 (Jul), 307.
[3] L. Leclerc, R. Beaulieu; *Can. J. Phys.*, 1985, **63**, 1148.

Optical measurement of three-photon absorption coefficient in GaAs semiconductor

CHENG ZHAO, XU DALUN, WANG LIMING AND HOU XUN

(Laboratory for Transient Optics Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision
Mechanics, Academia Sinica, Xi'an 710068)

(Received 30 April 1991; revised 16 June 1991)

Abstract

Using the nonlinear transmission (NLT) technique, the experimental investigation on three-photon absorption processes in GaAs intrinsic semiconductor illuminated by a pulsed laser at $2.06\mu\text{m}$ is firstly described in this paper. Three-photon absorption and subsequent excited state absorption of the generated electrons and holes have been observed. Three-photon absorption coefficient has been measured and the experimental result is in good agreement with the theoretical value.

Key words: three-photon absorption, nonlinear transmission (NLT).