

抽运-探测反射技术研究本征 CdTe 的载流子动力学

金钻明 马红 李栋 马国宏

(上海大学理学院物理系 上海 200444)

摘要 采用抽运-探测反射技术,研究了室温下本征 CdTe 晶体的光致非平衡载流子布局与光子能量和抽运光强的关系。根据实验结果,发现随着抽运光光子能量的提高,快过程在载流子弛豫过程中所占的比例增大;随着抽运光功率的提高,反射率随之增大,快过程时间常数也随之增大。通过建立简单的本征半导体受激载流子弛豫过程模型,讨论了载流子散射、载流子-声子相互作用和载流子复合等的贡献。在抽运光光子能量为 1.49 eV(比 CdTe 的禁带宽度约高 20 meV)时,通过双指数函数拟合,得到了本征 CdTe 中载流子弛豫过程的快、慢时间常数,分别为 2.8 ps 和 158.3 ps。

关键词 超快光学; 载流子动力学; 抽运-探测技术; 本征 CdTe

中图分类号 O472+.3 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20092908.2343

Carrier Dynamics of Intrinsic CdTe by Pump-Probe Reflection Spectroscopy

Jin Zuanming Ma Hong Li Dong Ma Guohong

(Department of Physics, College of Science, Shanghai University, Shanghai 200444, China)

Abstract The transient carrier dynamics of intrinsic CdTe was investigated by time-resolved femtosecond pump-probe reflection spectroscopy method (PPR) at different wavelengths and powers. The experimental results show that the percentage of the rapid process in carrier relaxation process grows with the increase of the pumped photon energy. The rapid process constant and reflectivity increase when the pumped optical power increases. The model of ultrafast carrier dynamics in intrinsic semiconductor was developed, and the effects of carrier initial scattering, carrier-LO phonon interaction and carrier trapping on carrier relaxation properties were analyzed. The curve of the PPR at the photon energy of 1.49 eV (~ 20 mV more than the band gap of CdTe) is measured, the fast time constant and the slow one are 2.8 ps and 158.3 ps respectively.

Keywords ultrafast optics; carrier dynamics; pump-probe; intrinsic CdTe

1 引言

随着激光技术的发展,飞秒激光器的出现为超快过程、高阶非线性效应的研究提供了有效的研究手段,同时也使得半导体中载流子的超快动力学成为相当活跃的研究领域^[1,2]。本征 CdTe 是光学性质良好的非线性光学材料,其双光子吸收系数^[3,4]、非线性折射率指数^[5]、磁光克尔效应^[6,7]等已经得到

广泛的研究。本文采用时间分辨抽运-探测反射技术(PPR)研究本征半导体 CdTe 的超快动力学行为,其优点在于反射的探测光将携带样品表面和一定深度上的诸如激发态吸收、漂白、载流子扩散、表面复合等很多有价值的信息^[8~12]。实验主要基于对不同激发能量和不同激发功率下,本征 CdTe 体材料的激发态弛豫过程的研究和对近共振能级处的

收稿日期: 2008-9-12 **收到修改稿日期**: 2008-12-10

基金项目: 国家自然科学基金(10774099)、上海高校特聘教授(东方学者)岗位计划、教育部留学回国人员科研启动基金、上海市教育委员会发展基金(06AZ089)和上海市无线电物理重点学科(S30105)资助课题。

作者简介: 金钻明(1986-),男,硕士研究生,主要从事超快光谱学方面的研究。E-mail: zuanmingjin@shu.edu.cn

导师简介: 马国宏(1969-),男,博士,教授,上海高校特聘教授(东方学者),主要从事超快光学的基础和器件方面的研究。Email: ghma@staff.shu.edu.cn

载流子弛豫过程进行双指数拟合,并且得到了对应于不同弛豫机制的时间常数。

2 实 验

CdTe 是典型的 II-VI 族直接带隙化合物半导体,其带隙约为 1.44 eV。从能带结构上看(图 1 插图),其价带有 3 个子能带,重空穴带,轻空穴带和自旋分裂带,导带的最低能级只有 1 个能带。实验所采用的 CdTe 是 [111] 生长的、不掺杂的本征半导体,材料厚度为 450 μm 。通过紫外-可见分光光度计(型号 2800 UV/VIS SPECTROPHOTOMETER)测得了实验样品的吸收光谱(如图 1 所示),可以看出样品的吸收边在 850 nm 左右。

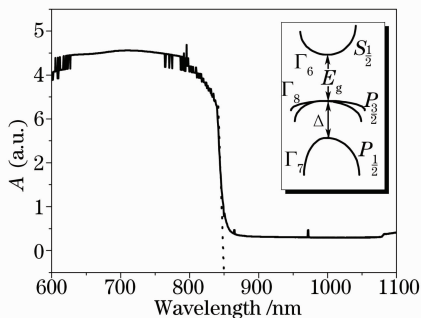


图 1 CdTe 吸收光谱,插图为 CdTe 能带结构

Fig. 1 Absorption spectra of CdTe, the inset shows the band structure of CdTe.

实验装置如图 2 所示。实验中所使用的激光器为 Spectra-Physics 公司的 High-Performance, Mode-Locked, Ti:sapphire Laser(Mai Tai HP1020)激光器,由钛宝石激光系统输出的宽度小于 100 fs,重复频率为 80 MHz,水平偏振的高斯脉冲,利用分束器 BS (beam splitter)将激光分成较强的抽运光和较弱的探测光,光强比值一般在 10:1 左右,探测光通过一个由计算机控制的精密光学延迟线改变与抽运光的时间延迟。光学延迟平台的空间分辨率移精度是 1.25 μm ,相应于时间延迟精度约 8.3 fs。探测光和抽运光通过一个焦距为 15 cm 的薄透镜,聚焦到样品上,样品位置处光斑的尺寸约为 60 μm 。通过切光器方法实现抽运光和探测光在空间上的重叠,且探测光光斑必须包含在抽运光光斑内。使用锁相放大器(lock-in)和斩波器提高实验灵敏性,斩波器放置在抽运光光路上,发送同步信号 1040 HZ 给 lock-in 放大器。样品反射的探测光,由灵敏硅光电二极管接收并将光信号线性的转换为电信号,经 lock-in 放大后送入计算机采集数据。实验中两束

光的偏振方向保持平行。

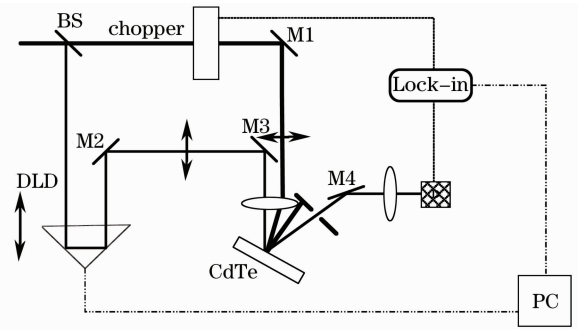


图 2 抽运-探测实验装置

Fig. 2 Arrangement for a typical time resolved pump-probe reflection experiment.

3 结果与分析

通过调节抽运光光子能量(1.49~1.63 eV),得到了 CdTe 的一系列激发态弛豫过程(如图 3 所示)。从归一化的实验结果可以看到一个快速的光致漂白建立及其恢复过程。超快激光脉冲激发的半导体载流子的弛豫过程十分复杂。一般认为有三个过程:1)初始散射过程,对应于载流子通过相位的弛豫和载流子布居迅速散射,此过程约经历几百飞秒到几个皮秒。值得注意的是,相位的弛豫和载流子布居等弛豫过程在时间上并不是严格相继的,而是有重叠的;2)热载流子“冷却”至晶格温度的过程,此过程约几个皮秒;3)电子-空穴复合过程,约为几百皮秒。我们简称第一个过程为快过程,后两个过程为慢过程。从实验结果看(如图 3 所示),随着光子能量的降低,半导体载流子的弛豫过程变缓,快过程渐渐消失,相应于快过程时间常数减少;反之光子能量增高,快过程十分明显。这显然与电子被激发到高能态后通过谷内散射弛豫有关。能量越高的光子将电子激发到导带上更高的能级,因此也需要更长

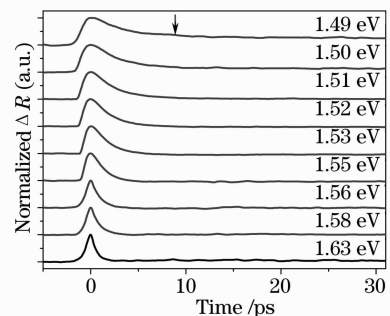


图 3 归一化抽运-探测实验结果

Fig. 3 Transient reflectivity changes ΔR with parallel polarization at different pump photon energy.

的散射弛豫时间(τ_c)和电子-声子相互作用时间(τ_{LO})。当光子能量低于 1.42 eV 后,将发生明显的双光子吸收现象。

选取图 3 中对应于 1.49 eV 的载流子弛豫过程可以看出,激发后的载流子曲线在很长的时间内没有回复到激发之前,这是由于本征 CdTe 缺陷态很少,载流子不能通过缺陷迅速复合,故而能较长时间驻留在较高的能级。但最终,能量将从载流子转移给晶格,使得载流子与晶格达到热平衡。另外,通过电子-空穴复合过程,反射率曲线也终将回复到起始状态。

反射光谱的漂白过程包含两类线性响应贡献,一是由自由载流子布局引起的介电函数变化,另一类是由带间跃迁引起的介电函数变化。通常自由载流子的贡献用 Drude 模型描述,而带间跃迁则由以下三个瞬态效应引起:态填充,晶格温度改变和带隙重整。理论模型可参见文献[13]。

将激发光脉冲调至 820 nm,通过在抽运光路中插入可调的衰减片调节不同的脉冲平均功率,探测光脉冲平均功率为 8 mW。实验结果如图 4 所示,随着抽运光功率的增加,反射率相应提高。

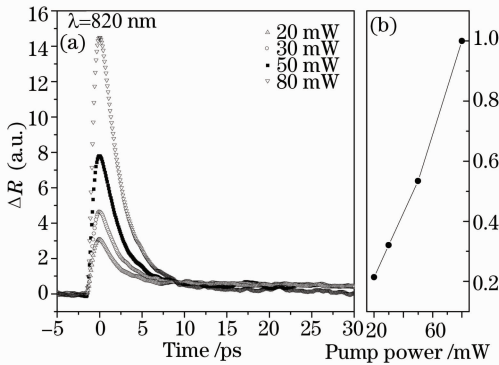


图 4 (a)不同抽运光功率下的瞬态反射率曲线;(b)抽运光波长为 820 nm,零延迟时间下的反射率与抽运光功率的关系

Fig. 4 (a) Transient reflectivity changes ΔR with parallel polarization at different pump photon power; (b) incident pump-power dependence of the normalized reflectivity changes (ΔR) of the probe beam at zero delay time at 820 nm.

通过归一化的实验结果可以得到[如图 5(a)所示],随着激发强度的不断增加,载流子弛豫过程中的快过程 τ_f 逐渐变慢[如图 5(b)所示],而慢的弛豫时间 τ_s 基本上与激发光强度无关。

慢过程是由于光激发载流子在很短的时间内受陷于表面态,从而形成限域载流子弛豫的过程。其

中包含的载流子的扩散和表面复合,在研究半导体器件载流子的行为上至关重要,所以有必要着重分析反射谱中弛豫较慢的,衰减时间较长部分的内在信息。

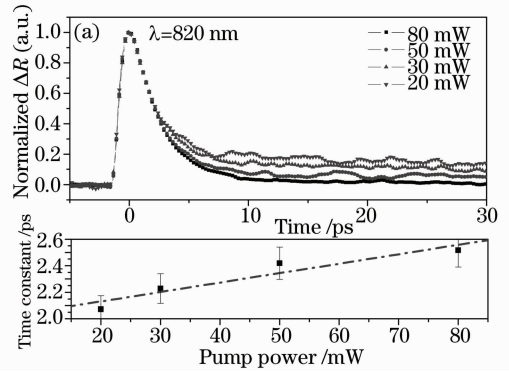


图 5 (a)归一化实验结果(b)快过程时间常数与抽运光功率的关系

Fig. 5 (a) Normalized pump-probe reflectivity curves at $\lambda=820$ nm(close to the band edge of the CdTe crystal), for various pump power of 20 mW, 30 mW, 50 mW and 80 mW. (b) The trace of the fast time constants versus pumping photon power.

首先建立本征半导体的受激弛豫过程模型,图 6 插图为 CdTe 的受激电子的超快弛豫动力学过程的示意图。做如下假设: N 为导带中激发态的载流子浓度, τ_c 为载流子-载流子散射时间, τ_{LO} 为电子-LO 声子作用时间, τ_r 为载流子复合时间。在本征半导体内可以忽略缺陷态的影响,因而激发态附近载流子弛豫的速率方程可写为^[14]

$$\frac{dN}{dt} = \alpha \frac{I_0}{\hbar\omega} - \frac{N}{\tau_c} - \frac{N}{\tau_{LO}}, \quad (1)$$

式中 α 为带间吸收系数。

经过初始散射过程,载流子达到平衡的等离子体分布,驻留在激发态的电子浓度变为 N' ,根据第二个弛豫过程, N' 的变化可表示为

$$\frac{dN'}{dt} = -\frac{N'}{\tau_{cool}}, \quad (2)$$

其中 τ_{cool} 为热载流子的“冷却”时间。我们将受激载流子的初始散射速率定义为 $\frac{1}{\tau_f} = \frac{1}{\tau_c} + \frac{1}{\tau_{LO}}$,而慢过程主要由冷却时间和复合时间决定,即 $\frac{1}{\tau_s} = \frac{1}{\tau_{cool}} + \frac{1}{\tau_r}$ 。

在研究 CdTe 的快慢弛豫时间过程中,选择的激发波长为 830 nm。通过考虑了激光脉冲宽度的双指数函数对归一化的实验数据进行拟合,如图 6

所示。可以得到快慢时间常数,分别是 $\tau_f = 2.8$ ps 和 $\tau_s = 158.3$ ps。相比在本征 GaAs 中的实验结果^[15],时间常数显然慢了许多。

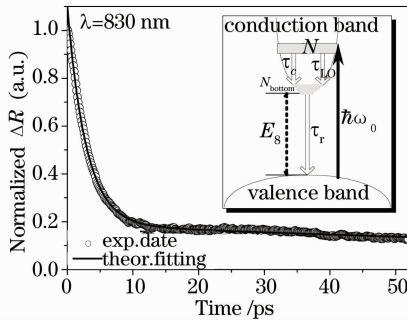


图 6 激发波长为 830 nm 时的载流子弛豫过程;插图
为 CdTe 的受激电子的超快动力学弛豫过程示意图

Fig. 6 Ultrafast carrier relaxation at wavelength of 830 nm, the inset shows the ultrafast carrier dynamics model of CdTe

4 结 论

通过时间分辨抽运-探测反射技术,研究了本征 CdTe 体材料中的非平衡载流子分布动力学过程和材料的非线性光学信息,研究了室温下本征 CdTe 的光致非平衡载流子布局与光子能量、光子强度的关系。在抽运光光子能量为 1.49 eV(比 CdTe 的禁带宽度约高 20 meV)时,得到了本征 CdTe 中载流子弛豫过程的快、慢时间常数,分别为 2.8 ps 和 158.3 ps。这些都为理解本征 CdTe 的载流子动力学、改善半导体材料和半导体器件性能、研制高速光电子器件提供新的资料和必要的参考。

参 考 文 献

- 1 C. Rulliere. Femtosecond Laser Pulses Principles and Experiments (2nd edition)[M]. Beijing: Scienc Press. 2007, 223~280
- 2 Jagdeep Shah, Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures [M], Springer, 1999,135~160
- 3 M. Schall, P. Uhd Jepsen. Above-band gap two-photon absorption and its influence on ultrafast carrier dynamics in ZnTe and CdTe[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2002,**80**(25): 4771~4773
- 4 Lázaro A. Padilha Jie Fu, David Hagan *et al.*. Two-photon absorption in CdTe quantum dots[J]. *Optics Express*, 2005, **13**(17): 6460~6467
- 5 Satoshi Tatsuura, Takashi Matsubara, Hiroyuki Mi su *et al.*. Cadmium telluride bulk crystal as an ultrafast nonlinear optical switch [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **87**(25): 251110-1~251110-3
- 6 A. V. Kimel, V. V. Pavlov, R. V. Pisarev *et al.*. Ultrafast dynamics of photo-induced magneto-optical Kerr effect in CdTe at Room-temperature[J]. *Phys. Rev. B*, 2000,**62**(16): R10610~R10613
- 7 P. Nah'alkov' a, Spin dynamics in bulk CdTe at room temperature[J]. *Materials Science and Engineering B*, 2006, **126**: 143~147
- 8 Li Dan, Yang He-qing, Liang Chunjun *et al.*. Transient dynamics of excited states and nonlinear optical properties of InP nanoparticle[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2006, **26**(9): 1742~174
- 李 丹, 杨合晴, 梁春军 等, InP 纳米颗粒的超快动力学和光学非线性[J]. *光谱学与光谱分析*, 2006,**26**(9): 1742~174
- 9 Liu Guodong, Wang Guibing, Fu Bo *et al.*. Ultrafast pump-probe reflectivity study of carrier dynamics in silicon surface[J]. *Chinse J. Lasers*, 2008,**35**(9): 6631~9631
- 刘国栋, 王贵兵, 付 博 等. 单晶硅表面载流子动力学的超快抽运探测 [J]. *中国激光*, 2008,**35**(9): 6631~9631
- 10 Ma Hong, Ma Guohong, Wang Wenjun *et al.*. Size-dependent optical properties and carriers dynamics in CdSe/ZnS quantum dots[J]. *Chinese Physics B*, 2008,**17**(4): 1280~1286
- 11 Haiyu Sang, Ming Li, Xiangyang Yu *et al.*. Study of intensity-dependent nonlinear optical coefficients of GaP optical crystal at 800 nm by femtosecond pump-probe experiment[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2006,**4**(9): 536~538
- 12 C.-K. Sun, F. Valle'e, S. Keller *et al.*. Femtosecond studies of carrier dynamics in InGaN [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**(15): 2004~2006
- 13 S. S. Prabhu A. S. Vengurlekar. Dynamics of the pump-probe reflectivity spectra in GaAs and GaN[J]. *J. Appl. Phys.*, 2004, **95**(12): 7803~7811
- 14 Andreas Othonos. Probing ultrafast carrier and phonon dynamics in semiconductors[J]. *J. Appl. Phys.*, 1998,**83**(4): 1789~1828
- 15 Wen Jinhui, Chen Yingyu, Huang Chun *et al.*. Ultrafast carrier dynamics of low-temperature-grown gaAs, [J]. *J. Infrared Millim. Wave*, 1999,**18**(3): 195~200
- 文锦辉, 陈颖宇, 黄 淳 等. 低温生长 GaAs 非平衡载流子的超快动力学特性[J]. *红外与毫米波学报*, 1999,**18**(3): 195~200