

GaAs 半导体中三光子吸收的研究

徐大纶 程 昭 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国家重点实验室, 西安 710068)

摘 要 本文利用全量子理论推导了半导体中多光子吸收跃迁速率的一般表达式. 对各种模型计算了本征 GaAs 在 $\lambda=2.06\mu\text{m}$ 下的三光子吸收系数. 实验上采用非线性光电导和非线性光透射技术, 测量了 GaAs 中三光子吸收系数.

关键词 三光子吸收; 非线性光电导; 非线性光透射

0 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, 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². 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³. 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, 但是在都集中在双光子吸收上, 本文从理论和实验两方面研究了 GaAs 半导体中三光子吸收过程, 其中对于 GaAs 半导体中三光子吸收系数的测量, 国内外都未见报道.

1 理 论

在全量子理论下, 半导体中一个电子同时吸收三个能量为 $\hbar\omega$ 的光子, 从价带 V 跃迁到导带 C 时, 单位体积的跃迁速度为⁴

$$\begin{aligned} W_3 = & \frac{1}{(2\pi)^2 \hbar} \frac{I_0}{2\epsilon_0 C n_r \omega^2} g^{(3)} \int d^3 k \left| \sum_{A_1} \sum_{A_2} \frac{\langle A_i | -\frac{e}{m} \hat{U} \hat{P} | A_1 \rangle}{[2\hbar\omega + E_v(k) - E_i(k)]} \right. \\ & \times \frac{\langle A_1 | -\frac{e}{m} \hat{U} \hat{P} | A_2 \rangle \langle A_2 | -\frac{e}{m} \hat{U} \hat{P} | A_v \rangle}{[\hbar\omega + E_v(k) - E_i(k)]} \\ & + \sum_{A_i} \left\{ \frac{\langle A_i | \frac{e^2}{2m} \hat{U} \hat{U} | A_1 \rangle \langle A_1 | -\frac{e}{m} \hat{U} \hat{P} | A_v \rangle}{[\hbar\omega + E_v(k) - E_i(k)]} \right. \\ & + \frac{\langle A_i | -\frac{e}{m} \hat{U} \hat{P} | A_1 \rangle \langle A_1 | \frac{e^2}{2m} \hat{U} \hat{U} | A_v \rangle}{[2\hbar\omega + E_v(k) - E_i(k)]} \left. \right\}^2 \\ & \times \delta[3\hbar\omega + E_v(k) - E_i(k)] \end{aligned} \quad (1)$$

式中 $\hbar=h/2\pi$, h 为普朗克常数, ϵ_0 为介电常数, n_r 为介质折射率, $g^{(3)}$ 为三阶光子相干度, A_1, A_2 表示中间态, E_1, E_2 表示中间态能量, $\hat{P}$ 表示电子的动量算符, ω 为辐射场圆频率, k 为光的波矢, $\hat{U}$ 为模的偏振方向的单位矢量, I_0 为入射光强度.

上式绝对值中的第一项为原子与辐射场相互作用哈密顿算符的线性项的贡献, 第二项为非线性的贡献.

三光子吸收系数 α_3 与单位体积跃迁速率 W_3 的关系为

收稿日期: 1994-02-19

$$\alpha_3 = 6\hbar\omega W_3/I^3 \quad (2)$$

1.1 二能带模型²

这一模型是把价带(V)和导带(C)除作为跃迁的初态和终态外,本身也作为中间态,从而对中间态的求和得以简化.

在抛物线型能带近似下,三光子吸收系数的表达式为

$$\begin{aligned} \alpha_{3p} = & \frac{3}{\sqrt{2}} \frac{e}{\pi \hbar^7 \omega^3} \left(\frac{e}{m}\right)^6 \left(\frac{1}{2\epsilon_0 c n_r \omega^2}\right)^3 g^{(3)} |P_{cv}(0)|^2 \left[\frac{4m^4}{5\sqrt{m_{vc}^*}} (3\hbar\omega - E_g)^{5/2} \right. \\ & \left. + \frac{P_{vc}|4m_{vc}^{*3/2}}{4} (3\hbar\omega - E_g)^{1/2} - \frac{2m^2\sqrt{m_{vc}^*}}{3m} |P_{vc}(0)|^2 (3\hbar\omega - E_g)^{3/2} \right] \end{aligned} \quad (3)$$

对非抛物线近似

$$\begin{aligned} \alpha_{3np} = & \frac{9}{2\pi \hbar^6 \omega^2} \left(\frac{e}{m}\right)^6 \left(\frac{1}{2\epsilon_0 c n_r \omega^2}\right)^3 g^{(3)} \frac{|P_{vc}(0)|^2}{E_g} \left[\frac{m^4}{5\sqrt{m_{vc}^*}} \left(\frac{9\hbar^2\omega^2 - E_g^2}{E_g}\right)^{5/2} \right. \\ & \left. + \frac{|P_{vc}(0)|^4 m_{vc}^{*3/2}}{4} \left(\frac{9\hbar^2\omega^2 - E_g^2}{E_g}\right)^{1/2} - \frac{m^2\sqrt{m_{vc}^*} |P_{vc}(0)|^2}{3} \left(\frac{9\hbar\omega^2 - E_g^2}{E_g}\right)^{3/2} \right] \end{aligned} \quad (4)$$

式中 m_{vc}^* 为价带和导带的有效折合质量, E_g 为禁带宽度.

1.2 四能带模型

在这种理论模型中,我们将对中间态的求和用二个高导带来代替,即通过价带(V)、导带(C)及导带(M)、(N)四能带模型简化计算.

下面我们对允许—允许—允许($a-a-a$)跃迁及允许—允许—禁戒($a-a-f$)跃迁给出三光子吸收系数的表达式.

$a-a-a$ 跃迁下,对抛物线型能带近似,其三光子吸收系数的表达式为

$$\begin{aligned} \alpha_{3p} = & \frac{6\hbar\omega W_{3p}}{I^3} = \frac{3\omega}{\pi \hbar^3} \left(\frac{e}{m}\right)^6 \left(\frac{1}{2\epsilon_0 c n_r \omega^2}\right)^3 g^{(3)} (2m_{cv}^*)^{3/2} (3\hbar\omega - E_g)^{1/2} \\ & \times \hat{S} \left| \frac{P_{cm}(0)P_{mn}(0)P_{nv}(0)}{[\Delta_m - 2\hbar\omega + \frac{m_{vc}^*}{m_{vm}^*} (3\hbar\omega - E_g)][\Delta_n - \hbar\omega + \frac{m_{vc}^*}{m_{vn}^*} (3\hbar\omega - E_g)]} \right|^2 \end{aligned} \quad (5)$$

对非抛物线近似

$$\begin{aligned} \alpha_{3np} = & \frac{18\omega^2}{\pi \hbar^2} \left(\frac{e}{m}\right)^2 \left(\frac{1}{2\epsilon_0 c n_r \omega^2}\right)^3 g^{(3)} \frac{m_{vc}^{*3/2} [(3\hbar\omega)^2 - E_g^2]^{1/2}}{E_g^{3/2}} \\ & \times \hat{S} \left| \frac{P_{cm}(0)P_{mn}(0)P_{nv}(0)}{[\Delta_m(1 + \frac{m_{vc}^*[(3\hbar\omega)^2 - E_g^2]}{m_{vm}^* E_g \Delta_m})^{1/2} - 2\hbar\omega]} \right. \\ & \times \left. \frac{1}{[\Delta_n(1 + \frac{m_{vc}^*[(3\hbar\omega)^2 - E_g^2]}{m_{vn}^* E_g \Delta_n})^{1/2} - \hbar\omega]} \right|^2 \end{aligned} \quad (6)$$

同样在 $a-a-f$ 跃迁下,对抛物线及非抛物线近似的三光子吸收系数的表达式为

$$\begin{aligned} \alpha_{3p} = & \frac{\omega}{\pi \hbar^3} \left(\frac{e}{m}\right)^6 \left(\frac{1}{2\epsilon_0 c n_r \omega^2}\right)^3 g^{(3)} (2m_{cv}^*)^{5/2} (3\hbar\omega - E_g)^{3/2} \left(\frac{m}{m^+}\right)^2 \\ & \times \hat{S} \left| \frac{P_{cm}(0)P_{nv}(0)}{[\Delta_m - 2\hbar\omega + \frac{m_{vc}^*}{m_{vm}^*} (3\hbar\omega - E_g)][\Delta_n - \hbar\omega + \frac{m_{vc}^*}{m_{vn}^*} (3\hbar\omega - E_g)]} \right|^2 \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \alpha_{3np} = & \frac{6\omega^2}{\pi \hbar^2} \left(\frac{e}{m}\right)^6 \left(\frac{1}{2\epsilon_0 c n_r \omega^2}\right)^3 g^{(3)} m_{vc}^{*5/2} [(3\hbar\omega)^2 - E_g^2]^{3/2} E_g^{-5/2} \left(\frac{m}{m^+}\right)^2 \\ & \times \hat{S} \left| \frac{P_{cm}(0)P_{nv}(0)}{[\Delta_m(1 + \frac{m_{vc}^*(9\hbar^2\omega^2 - E_g^2)}{m_{vm}^* E_g \Delta_m})^{1/2} - 2\hbar\omega]} \right. \\ & \times \left. \frac{P_{cm}(0)P_{nv}(0)}{[\Delta_n(1 + \frac{m_{vc}^*(9\hbar^2\omega^2 - E_g^2)}{m_{vn}^* E_g \Delta_n})^{1/2} - \hbar\omega]} \right|^2 \end{aligned} \quad (8)$$

式中 $\hat{S}$ 为对称化算符,表示对 m,n 的对易求和, m^+ 为跃迁的有效质量.

1.3 GaAs 三光子吸收系数及其色散曲线

表 1 中给出了光子能量为 0.602eV 时,GaAs 半导体中三光子吸收系数的理论计算与实验测量值.可以看出二能带模型下非抛物线近似的三光子吸收系数的理论值与实验结果符合较好.

表 1 GaAs 的三光子吸收系数(cm^3/GW) ($\hbar\omega=0.602\text{eV}$)

理 论						实 验	
四能级横型				二能级横型		非线性光电导	非线性光透射
$a-a-a$		$a-a-f$		抛物线	非抛物线		
抛物线	非抛物线	抛物线	非抛物线				
1.32×10^{-2}	1.74×10^{-2}	0.07×10^{-2}	0.10×10^{-2}	1.02×10^{-1}	1.79×10^{-1}	2.83×10^{-1}	4.0×10^{-1}

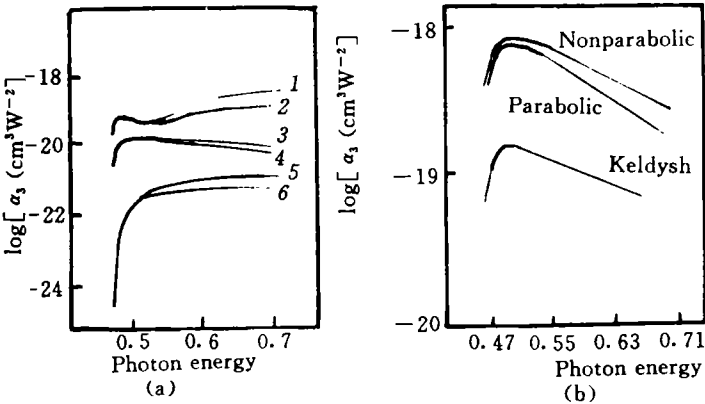


图 1 GaAs 三光子吸收系数的色散曲线 (a)我们的计算结果:1)非抛物线二能带模型;2)抛物线二能带模型
3)非抛物线四能带模型($a-a-a$);4)抛物线四能带模型($a-a-a$);
5)非抛物线四能带模型($a-a-f$);6)抛物线四能带模型($a-a-f$); (b)文献 5 给出的结果

Fig.1 Dispersive curves of three-photon absorption coefficients in GaAs. (a)Our Calculated results
1)Two-band model for a non-parabolic band;2)Two-band model for a parabolic band;
3)Four-band model for a non-parabolic band($a-a-a$);4)Four-band model for a parabolic band($a-a-a$)
5)Four-band model for a non-parabolic band($a-a-f$);6)Four-band model for a parabolic band($a-a-f$).
(b)Results from reference

图 1(a)为我们由式(3)~(8)得到的 GaAs 中三光子吸收系数与光子能量的关系曲线即色散曲线.图 1(b)为 Mitra 等人⁵给出的 $a-a-a$ 跃迁下,GaAs 的三光子吸收系数的色散曲线.从图中可以看出:我们所计算的四能带模型三光子吸收系数的色散曲线与 Mitra 所给出的色散曲线具有相同的特征.

2 实验测量

2.1 非线性光电导(NLP)技术

非线性光电导技术是通过测量由多光子吸收所引起样品电导率的变化,从而得出多光子吸收系数.测量 GaAs 三光子吸收的 NLP 装置如图 2 所示.调 Q YLF 激光器产生波长 $\lambda=2.06\mu\text{m}$ (光子能量为 0.602eV),脉冲宽度 $\tau_L=80\text{ns}$ 的激光,GaAs 的禁带宽度为 1.43eV,满足三光子吸收条件 $2\hbar\omega<E_g<3\hbar\omega$.该激光脉冲通过滤光片 F 和衰减片 A,经分束镜 BS 后,分路由能量计 ED 探测并记录,主路经透

镜 L 聚束照射在 GaAs 样品 S 上. 产生的电流脉冲经 RC 电路积分后形成的电压脉冲显示在示波器 BO 上. 用衰减片 A 改变激光脉冲光强, 测量不同光强下产生的电流脉冲总电荷量.

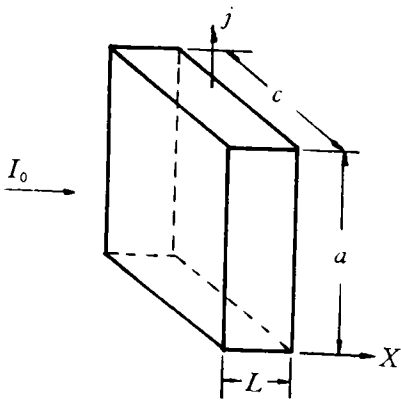
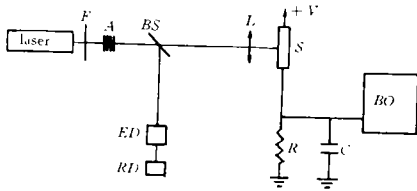


图 2 三光子吸收的 NLP 实验测量装置示意图
Fig2. Schematic diagram of the experimental setup for NLP measurement of three-photon absorption

图 3 光电导体示意图
Fig3. Schematic of a photoconductor

根据图 2 中的 RC 电路可以得到激光脉冲引起电容 C 的电压的变化量为

$$\Delta V_c(t) = \frac{V}{RC} \exp\left[-\frac{t}{RC}\right] \int_{-\infty}^{\infty} \Delta G(t) dt \tag{9}$$

这样, 光脉冲所感应的总电荷为

$$Q = \Delta V_{cmax} C = V \int_{-\infty}^{\infty} \Delta G(t) dt = VC_0 \tag{10}$$

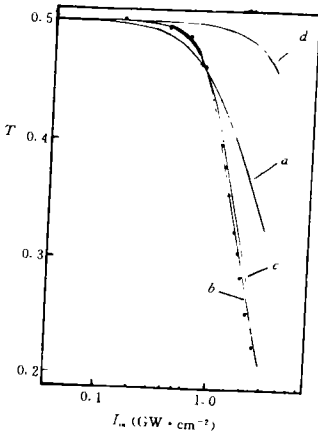
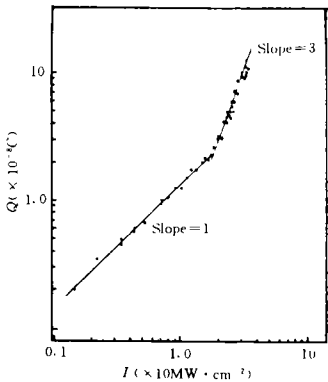


图 4 GaAs 的非线性光电导
Fig. 4 Nonlinear photoconductivity of GaAs

图 5 能量透过率随入射光强的变化
Fig.5 Energy transmittance as a function of incident laser intensity

式(10)中 ΔV_{cmax} 是示波器上的电压脉冲峰值, V 为外加直流电压, $\Delta G(\tau)$ 是激光脉冲引起的光电导. 在 $2\alpha_3 I_0^2 L(1-R)^2 \ll 1$ 时⁶

$$C_0 = e(\mu_h + \mu_e)\tau\tau_L \frac{c}{a} \cdot \frac{a_3 I_0^3 L(1-R)^6}{6h\omega} \tag{11}$$

式中 μ_h 、 μ_e 分别为空穴和电子的迁移率, τ 为自由载流子寿命, τ_L 为激光脉冲宽度, I_0 为入射光强, R 为样品反射率. 式(10)、(11)表明 Q 与 I_0^3 成正比.

图 4 是我们测得的电荷 Q 随光强 I_0 的变化曲线, 可以看出, 光强小于 $\sim 18 \text{ MW/cm}^2$ 时, 曲线的斜率近似为 1, 表明单光子过程占优势; 当光强大于 $\sim 18 \text{ MW/cm}^2$ 时, 曲线的斜率近似为 3, 表明三光子吸收占优势.

实验中使用 $V = 1100 \text{ V}$, $C = 12.6 \text{ nF}$, $\tau_L = 80 \text{ ns}$, 取 $\mu_h = 400 \text{ cm}^2/\text{s} \cdot \text{V}$, $\mu_e = 8500 \text{ cm}^2/\text{s} \cdot \text{V}$, $a = c$, $t =$

10^{-8}s , $I_0=25\text{MW}/\text{cm}^2$, 从图 4 及式(10)、(11)得到 $\alpha_3=2.83\times 10^{-1}\text{cm}^3/\text{GW}^2$. 能量透过率与 I_0 的关系见图 5.

2.2 非线性光透射(NLT)技术

非线性光透射技术是通过测量不同光强下的能量透过率来得到样品的吸收系数. 测量 GaAs 三光子吸收的 NLT 装置如图 6 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象⁹. 利用图 7 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,

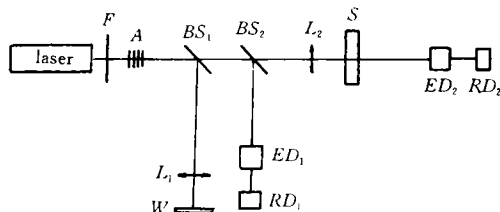


图 6 三光子吸收 NLT 测量装置示意图

fig. 6 Schematic diagram of experimental setup for NLT measurement of three-photon absorption

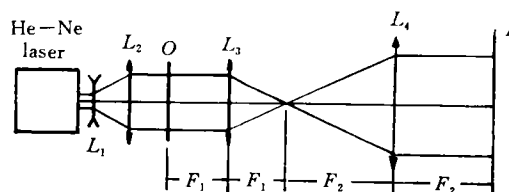


图 7 利用 He-Ne 激光器重视蜡膜上红外图象的实验装置示意图

Fig. 7 Schematic diagram of experimental setup to reconstruct the IR image on wax film with He-Ne laser light

照射在记录有红外图象的蜡膜 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 0.43mm 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, 如图 5 所示. 图中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 5 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. 当考虑电子和空穴激发态单光子吸收, 在 $\alpha_3=0.4\text{cm}^3/\text{GW}^2$, $\sigma_{ex1}=4.8\times 10^{-19}\text{cm}^2$ 的情况下, 获得理论拟合曲线(c), 当同时考虑激发态单光子和双光子吸收, 在 $\alpha_3=0.4\text{cm}^3/\text{GW}^2$, $\sigma_{ex1}=2.9\times 10^{-19}\text{cm}^2$, $\sigma_{ex2}=1.2\times 10^{-46}\text{cm}^4\text{s}$ 时, 获得理论拟合曲线(b). 由此可以得出结论: 透过率随光强而急剧减小, 主要是由三光子吸收所伴随的自由载流子的激发态单光子及双光子吸收所引起. 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. 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 5 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 Nathan Vaidya, Guenther A H, et al. J O S A (B), 1985 2(2): 294~316
- 2 Basov N G, Grasiuk A Z, Efimkov V F, et al. J Phys Soc Jpn, 1966, 21(Suppl): 277~282
- 3 Corno A D, Gabetta G, Reali G C, et al. optics Letters, 1990, 15(13): 734~736
- 4 程昭, 徐大纶, 王力鸣, 侯洵. 光子学报, 1992, 21(1): 1~10
- 5 Mitra S S, Judell N H K, Vaidyanathan A, et al. Opt Lett, 1982, 7(7): 307~309
- 6 程昭, 徐大纶, 王力鸣, 侯洵. 红外与毫米波学报, 1992, 11(4): 331~335

