

P 型锗中价带间跃迁的饱和现象

王威礼 周赫田 朱印康 邢启江

(北京大学物理系)

摘要——本文介绍 P 型锗红外非线性饱和吸收的实验研究。考虑了锗中轻、重空穴价带的能带结构并利用轻、重空穴价带的复合态密度,由电极化率的虚部推得类似于非均匀展宽两能级系统模型的饱和吸收具有 $\alpha(I, \omega) = \frac{\alpha_0(\omega)}{\left[1 + \frac{I(\omega)}{I_s(\omega)}\right]^{1/2}}$ 的形式。分别求出 α_0 和 I_s 与半导体参量和入射光频率之间的定量关系,计算结果与实验符合较好。

一、引 言

随着激光技术的进展,由高强度光激发导致的许多半导体非线性光学效应已有报道^[1,2]。Gibson 等人^[3]讨论的 P 型半导体对 CO₂ 激光器 10 μm 波长的饱和吸收即为一例。这样的饱和吸收特性具有一定的实用价值,在横向激励 TEA-CO₂ 激光器谐振腔内插入 P 型锗或 P 型砷化镓后,可以构成亚毫微秒的 CO₂ 锁模激光器,它是实现瞬态红外光谱实验的必要手段。此外,对 P 型锗中的饱和吸收的研究,有助于进一步探讨强光与物质相互作用和半导体非线性光学产生的机理。

P 型锗对 CO₂ 激光光束的吸收引起电子从轻空穴价带(基态)激发到重空穴价带(激发态)的跃迁。以往对 P 型锗价带间饱和吸收的分析是简单地使用研究气体分子时所常用的两能级系统。在强光辐照下,光激发引起电子垂直跃迁,随着光强的增强,在动态平衡时上能级(激发态)和下能级(基态)上电子占有的几率将趋于相等,此时吸收系数随光强的增加而减小,类似于稀释低速分子气体中的饱和吸收现象,这就是均匀展宽两能级系统的饱和吸收,它近似地解释了实验现象。参看图 1 所示的 P 型锗能带结构,其轻、重空穴带之间的能量间距不是常量,而是随波矢 k 连续变化的函数。这时,系统已不能用单一的谐振频率来描述,而是存在着一个连续变化的谐振频率分布,有点类似于气体分子处于运动状态时的多普勒效应。因此,吸收系数随光强变化的函数关系应该具有非均匀展宽两能级系统的结果,即

$$\alpha(I, \omega) = \frac{\alpha_0(\omega)}{\left[1 + \frac{I(\omega)}{I_s(\omega)}\right]^{1/2}}, \quad (1)$$

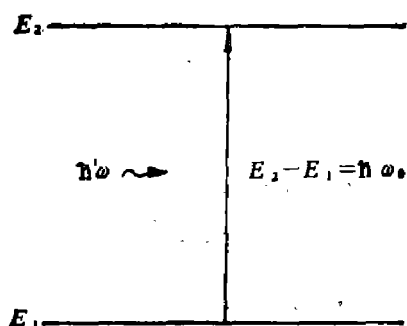


图 1(a) 能量为 $\hbar\omega$ 的光子被吸收引起电子从基态跃迁到激发态

Fig. 1(a) A photon of energy $\hbar\omega$ is absorbed in the process of exciting an electron from a ground state to an excited state

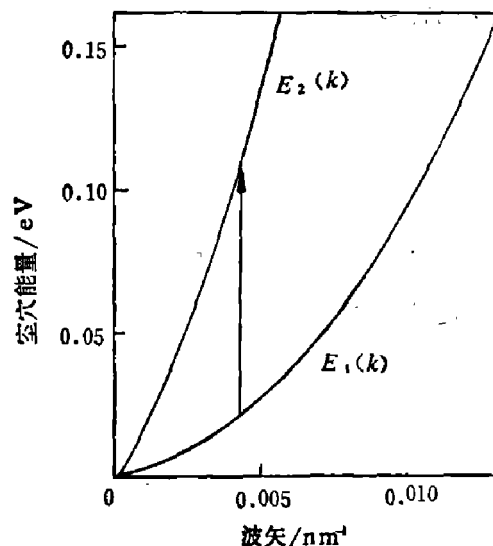


图 1(b) 在布里渊区中心附近锗的价带结构

Fig. 1(b) The valence band structure of Ge near the center of the Brillouin zone

这里 $\alpha_0(\omega)$ 是低光强时的线性吸收系数, $I(\omega)$ 是入射光强, ω 是光的圆频率, $I_s(\omega)$ 是饱和强度参量。实验结果证明, 我们的非均匀饱和吸收分析和理论计算与实验能更好地符合。

二、理论分析和推导

虽然 Kane^[4] 已详细地分析了锗的能带结构, 为简便起见, 在考虑价带时我们采用了各向同性的近似: 即在 k 空间中的等能面是环绕原点的球面, 轻、重空穴带的有效质量 $m_2 = 0.05m$ 和 $m_1 = 0.35m$ (m 是自由电子质量), 相应地描述抛物形价带 $E(k) - k$ 之间的函数关系, 可以分别表示为

$$E_2(k) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_2} \quad (2)$$

和

$$E_1(k) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_1} \quad (3)$$

由光激发引起电子在价带间的竖直跃迁, 其价带间的能量间距为

$$\Delta E(k) = E_2(k) - E_1(k) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_r} \quad (4)$$

这里 $\frac{1}{m_r} = \frac{1}{m_2} - \frac{1}{m_1}$ 是折合有效质量。

在考虑半导体介质的光吸收时, 我们还需要知道光激发的基态和激发态的态密度, 根据固体物理的原理, 由周期性边界条件规定 k 空间的态密度 $\rho(k)$ (包括电子的两个自旋态) 的表达式为

$$\rho(k) dk = \frac{k^2}{\pi^2} dk \quad (5)$$

将式(2)、(3)代入式(5), 可以得到包括轻、重空穴价带的在 $E \sim E + dE$ 范围内的复合态密度

$$\rho(E)dE = \frac{1}{2\pi^2} \left[\frac{2m_r}{\hbar^2} \right]^{3/2} E^{1/2} dE, \quad (6)$$

引入轻、重空穴带之间的中心谐振频率 $\omega = \frac{\Delta E}{\hbar}$, 式(6)可改写成

$$\rho(\omega_0)d\omega_0 = \frac{1}{2\pi^2} \left[\frac{2m_r}{\hbar} \right]^{3/2} \omega_0^{1/2} d\omega_0. \quad (7)$$

下面我们把用密度矩阵方法描述的介质宏观电极化效应的结果应用到半导体的光吸收效应中, 并进一步考虑锗中价带特点所产生的影响。电极化系数可以写成复数形式 $\chi = \chi' - i\chi''$, 其中实数部分与介质的折射率相关, 虚数部分与我们所要研究的吸收有关。用密度矩阵的方法^[5] 推得

$$\chi''(\omega, E_0) = \frac{\mu^2 T_2 \rho(\omega_0)}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{1}{1 + (\omega - \omega_0)^2 T_2^2 + \frac{\mu^2 E_0^2 T_2 T_1}{\hbar^2}}, \quad (8)$$

这里 μ 是跃迁偶极矩, E_0 是入射光的电场分量, ω 是入射光的圆频率, T_1 是能量的弛豫时间, T_2 是位相的弛豫时间, ε_0 是真空中介电常数。若引入光强密度

$$I(\omega) = \frac{c \varepsilon_0 n_0 E_0^2}{2} \quad (9)$$

和饱和参量

$$I_s = \frac{c \varepsilon_0 n_0 \hbar^2}{2 \mu^2 T_1 T_2}, \quad (10)$$

这里 c 是真空中光速, n_0 是半导体的折射率, 式(8)可改写为

$$\chi''(\omega, \omega_0, I) = \frac{\mu^2 T_2 \rho(\omega_0)}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{1}{1 + (\omega - \omega_0)^2 T_2^2 + \frac{I}{I_s}}. \quad (11)$$

式(11)具有洛仑兹函数的形式, 其洛仑兹线宽为

$$\Delta\nu = \frac{1}{\pi T_2} \cdot \left(1 + \frac{I}{I_s} \right)^{1/2}. \quad (12)$$

由此可见, 当入射光频率和介质的中心谐振频率重合时, 洛仑兹函数具有极大值, 在洛仑兹线宽以外的范围, 函数值很快衰减, 可以忽略不计。

在考虑 P 型锗的电极化系数时, 显然应该包括布里渊区内不同 k 值的轻、重空穴价带间电子跃迁的贡献。我们已知 k 的取值为准连续的分立值, 而每一个 k 值又对应着一个中心谐振频率, 所以在布里渊区内相应有一个中心谐振频率分布, 总的电极化系数的积分形式为

$$\chi_T''(\omega, I) = \int_{-\infty}^{\infty} \chi''(\omega, \omega_0, I) d\omega_0. \quad (13)$$

并且, 电极化系数与吸收系数之间应满足^[5]

$$\alpha(\omega, I) = \frac{\omega}{n_0 c} \chi_T''(\omega, I). \quad (14)$$

为了得到吸收系数的数学表达式, 我们采用了近似处理。前面已指出, 式(13)中被积函数只在洛仑兹线宽范围内具有有限值, 因而积分由布里渊区向无穷大的延伸并不影响最终的积分值。其次 P 型锗的轻、重空穴价带的复合态密度是随 k 值或中心谐振频率缓慢变化的函数, 可以近似认为是常量, 并且 $\rho(\omega_0) \doteq \rho(\omega)$ 。利用定积分关系

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx}{x^2 + a^2} = \frac{\pi}{a}, \quad (15)$$

可以得到

$$\alpha(\omega, I) = \frac{\mu^2 \omega (2m_r)^{3/2} (\hbar\omega)^{1/2}}{2\pi \epsilon_0 n_0 c \hbar^3} \frac{1}{\left(1 + \frac{I}{I_s}\right)^{1/2}} \quad (16)$$

显然,当我们引入

$$\alpha_0(\omega) = \frac{\mu^2 \omega (2m_r)^{3/2} (\hbar\omega)^{1/2}}{2\pi \epsilon_0 n_0 c \hbar^3} \quad (17)$$

时,式(16)就得到和式(1)完全相同的形式,即P型锗价带间的吸收呈现出非均匀展宽的饱和吸收特征,其中饱和参量 I_s 和弱光强时的线性吸收系数 $\alpha_0(\omega)$ 均可由半导体材料的光学和电学参数表示,以便进行理论计算和实验结果的比较。

三、实验测量

在室温下,我们通过测量透射来进行P型锗的非线性饱和吸收效应的实验观察。参看

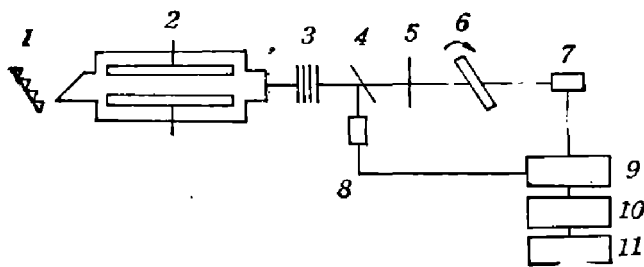


图2 实验装置

1—光栅; 2—TEA CO₂ 激光器; 3—衰减器; 4—光束分束器; 5—透镜; 6—锗样品; 7、8—光子牵引探测器; 9—脉冲峰值测量仪; 10—数字电压表; 11—打印机

Fig. 2 The experimental arrangement

图2, 实验装置的光源是横向激励的TEA-CO₂ 激光器, 利用TEM₀₀基模输出平面偏振激光辐射, 其兆瓦量级的脉冲光强足以引起吸收饱和。用衰减片来改变入射光强, 用光子牵引探测器监测由分束器得到的部分反射光, 单次脉冲强度的偏差保持在5%以下。为了最大限度地减小样品表面的反射, 我们使激光的平面偏振辐射经聚焦后, 以76°的布氏角投射到抛光后的锗样品上, 用焦距为50 cm的锗透镜将光束会聚成直径为2 mm的光斑。测量用的样品厚度为1.6 mm, P型锗的净掺杂浓度 $N_A - N_0$ 约 10^{16} cm^{-3} 。透射测量是通过转动样品交替置于光束内或光束外来进行的, 透射光强用另一个光子牵引探测器测量, 通过窄脉冲激光峰值测量仪^[6], 最后用数字电压表和打印机同时显示和记录数据。

透射光强 I_{out} 与入射光强 I_{in} 关系的实测结果示于图3。为了便于实验和理论计算结果的比较, 我们引入了定义为 $(1/\text{晶体厚度}) \times \ln(\text{入射光强}/\text{透射光强})$ 的有效吸收系数 α , 这是由于在非线性吸收介质内吸收系数已不再是一个常量, 但对于不太厚的样品, 有效吸收系数还是可以较好地

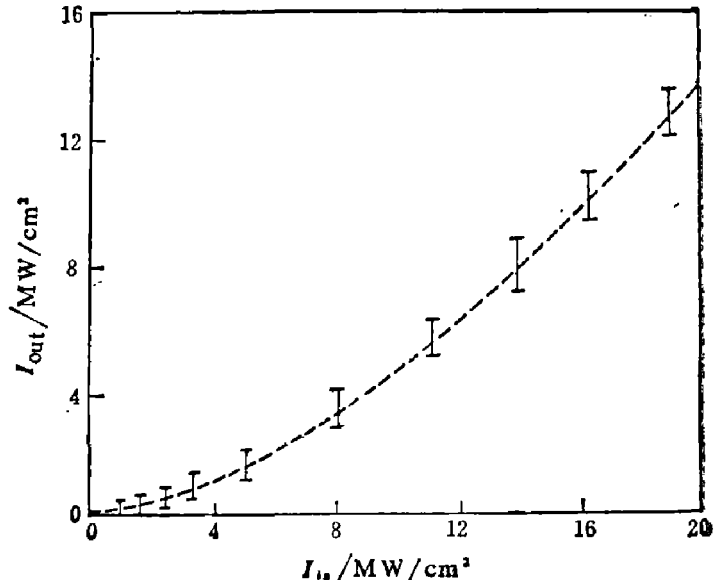


图3 室温下经过P型锗的透射光强 I_{out} 与入射光强 I_{in} 的关系

Fig. 3 Transmitted intensity I_{out} vs incident intensity I_{in} in P-Ge at room temperature

描述真实的物理过程。图4给出有效吸收系数 α 与入射光强 I_0 的关系,同时给出了理论计算曲线。在计算中我们考虑CO₂激光的波长为10.6 μm ,其光子能量相应为0.117eV,由此引起图1中P型锗价带间电子从轻空穴带到重空穴带的跃迁,亦可看作空穴从重空穴带到轻空穴带的跃迁,并且应该发生在 k 值为 $4.24 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-1}$ 处,其轻、重空穴带的能量分别是 $E=0.136 \text{ eV}$ 和 $E=0.019 \text{ eV}$ 。Brown^[7]指出,在室温下影响弛豫过程主要是光学声子和声学声子引起晶格散射,其他杂质散射和空穴间的散射由于弛豫时间较长可以忽略。光学声子的弛豫时间 τ_{op} 和声学声子的弛豫时间 τ_{ao} 均是能量的函数, $E=0.19 \text{ eV}$ 时,其数值为:

$\tau_{ao}=1.25 \text{ ps}$, $\tau_{op}=0.97 \text{ ps}$; $E=0.136 \text{ eV}$ 时, $\tau_{ao}=0.57 \text{ ps}$, $\tau_{op}=0.14 \text{ ps}$ 。

能量的弛豫过程可以认为是处于激发态的电子或空穴先通过与声学声子的散射,然后通过光学声子的散射的相互作用。由于光学声子的能量为0.037eV,所以在我们的实验中,一个电子或空穴需要与三个光学声子作用,能量逐级递减到基态能量附近,再通过声学声子或杂质的散射,最终回到基态。这样,能量弛豫时间 T_1 可估算为

$$T_1 = 1.25 + 3 \times \frac{1}{2} (0.97 + 0.14) = 2.9 \text{ ps}。$$

而位相弛豫过程则是轻、重空穴带上电子或空穴与声子相互作用的晶格散射,引起位相变化的位相弛豫时间应该为

$$T_2 = (1.25^{-1} + 0.97^{-1} + 0.57^{-1} + 0.14^{-1})^{-1} = 0.09 \text{ ps}。$$

此外,将由实验测得在弱光强时的线性吸收系数代入式(17)可得跃迁偶极矩 $\mu=7.13 \times 10^{-29} \text{ C} \cdot \text{m}$,因此由式(10)可得到饱和参量 $I_s=4 \text{ MW/cm}^2$ 。图3表明按式(1)或式(16)计算曲线与实验测量结果基本相符,说明我们对P型锗的非线性饱和吸收的理论分析和计算是正确的,非线性吸收的特点类似于非均匀展宽两能级系统模型。

四、讨 论

我们知道,在非线性吸收介质内,光强和吸收系数不再是常量,而是沿着光束传播方向 z 的函数,至少非线性吸收系数在形式上可写成

$$\alpha = \frac{1}{I} \frac{dI}{dz}。 \quad (18)$$

利用均匀展宽两能级系统模型,又有

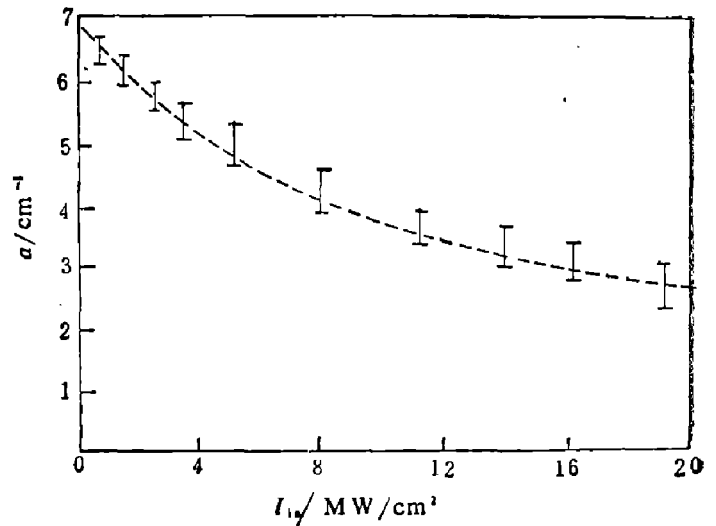


图4 有效吸收系数 α 的实验测量结果和理论计算曲线(虚线)

Fig.4 Experimental results compared with the theoretical curve (dashed line) for nonlinear absorption

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{I}{I_s}} \quad (19)$$

将式(19)代入式(18)后,对样品厚度 L 积分,可以得到 Gibson^[3] 的结果:

$$\ln(I_{in}/I_{out}) + (I_{in} - I_{out})/I_s = \alpha_0 L \quad (20)$$

现在,若把式(1)或式(16)代入式(18),即可以得到

$$\alpha_0 dx = \frac{\sqrt{1+I/I_s}}{I} dI \quad (21)$$

利用积分关系

$$\int \frac{\sqrt{1+I/I_s}}{I} dI = 2\sqrt{1+I/I_s} + \int \frac{dI}{I\sqrt{1+I/I_s}} \quad (22)$$

和

$$\int \frac{dI}{I\sqrt{1+I/I_s}} = \ln \frac{\sqrt{1+I/I_s}-1}{\sqrt{1+I/I_s}+1} \quad (23)$$

最后对样品厚度 L 积分,可得:

$$\alpha_0 L = \left\{ \ln \left[\frac{(1+I/I_s)^{1/2}-1}{(1+I/I_s)^{1/2}+1} \right] + 2(1+I/I_s)^{1/2} \right\} \Big|_{I_{in}}^{I_{out}} \quad (24)$$

在弱光强(即 $I < 4I_s$)时,我们可以得到与式(20)完全相同的结果,这说明了在较弱光强时,由实验测量结果难以区分饱和吸收到底具有均匀展宽还是非均匀展宽的形式,所以我们的实验是在样品所能承受的损伤阈值范围内,进一步提高了入射光强来验证我们的理论分析。

参 考 文 献

- [1] Phipps C. R. Jr. and Thomas S. T., *Opt. Lett.*, **1**(1977), 93.
- [2] Nurmikko A. V., *Opt. Comm.*, **18**(1976), 522.
- [3] Gibson A. F. et al, *Appl. Phys. Lett.*, **21**(1972), 356.
- [4] Kane E. O., *J. Phys. Chem. Solids*, **1**(1956), 82.
- [5] Yariv A., *Quantum Electronics*, 2nd Edition, Wiley, New York, 1975.
- [6] 张郁弘、庄灿涛,晶体管运算放大器及其应用,国防工业出版社,1979.
- [7] Brown D. M. and Bray R., *Phys. Rev.*, **127**(1962), 1593.

SATURATION OF INTERVALENCE-BAND TRANSITION IN P-TYPE GERMANIUM

WANG WEILI, ZHOU HETIAN, ZHU YINKANG, XING QIJIANG
(*Department of Physics, Peking University*)

ABSTRACT

The experimental research of infrared nonlinear saturation absorption in P-Ge is presented. By taking into account the light hole and heavy hole valence band structures and their combined density of states, the expression of saturation absorption is deduced from the imaginary part of the susceptibility, which is similar to the mode of inhomogeneous broadening of two-level system. The absorption coefficient as a function of light intensity is expressed as

$$\alpha(I, \omega) = \alpha_0 \left[1 + \frac{I(\omega)}{I_s(\omega)} \right]^{-1/2}.$$

The quantitative relations of α_0 and I_s to the parameters of semiconductor and the frequency of incident light are given. The theoretical calculation agrees with the experimental measurement.