通过散斑激光泵浦-瞬态傅里叶显微探测测量光生载流子平均自由程

Zuni Luo[1,2], Yifan Zhang[1,2], Jie Wei[2], Zhikun Xie[2], Tianshu Lai[2], 和 Ke Chen[1,2,*]

[1]中子科学与技术中心、广东省磁电物理与器件重点实验室、中山大学物理学院，中国广州 510275[2] 光电子材料与技术国家重点实验室、中山大学物理学院，中国广州 510275

摘要。光生载流子的平均自由程是材料设计、器件优化和新型光电子应用中的关键参数。 目前，许多材料的这一参数仍然未知，而且可用于测量它的实验方法十分匮乏。与此同时，光生高能“热”载流子的平均自由程是否显著不同于费米面附近局域平衡态载流子的平均自由程 或带边附近载流子的平均自由程，仍是一个尚未明确的问题。基于瞬态光栅傅里叶变换的概念，并采用虚拟锁相放大技术，我们提出并验证了一种高效测量光生载流子平均自由程的实验技术。该方法实现了对光生载流子输运行为在扩散运动与弹道运动之间转变过程的直接观测；由此我们意外发现，硅膜和砷化镓量子阱中光生热载流子的平均自由程可达微米尺度，比电学测得的数值大一个数量级以上。本研究为工作状态下光电器件的表征提供了新思路，有望显著加深人们对光电子或光子材料中光生载流子输运过程的理解。

光生载流子平均自由程（PMFP）是决定半导体光电子器件性能的核心参数之一。 当这些器件的关键尺寸（例如吸收层厚度和耗尽区宽度）超过 PMFP 时，载流子会频繁散射，从而发生能量弛豫或复合，导致收集效率降低。 因此，调控 PMFP [1-4] 是材料设计、器件优化和新型光电子应用中的一个重要研究方向。 此外，对于光探测方案，电场作用下的 PMFP 决定饱和漂移速度，并限制响应速度 [2-6]。而在太阳能电池中，体光伏效应所致非热化电子在 PMFP 范围内的弹道输运会直接影响光电转换，甚至可能突破肖克利-奎伊瑟效率极限 [7-10]。

多项研究指出，非平衡态下的高能光生载流子，其迁移率 [8,10] 和扩散系数 [11-13]，显著高于费米能级 或带边附近的低能载流子，甚至可高出两个数量级。这意味着光生载流子的 平均自由程要长得多（MFP）。此外，研究人员指出，根据与晶格达到热平衡的平衡载流子速度估算出的平均自由程，应视为热载流子平均自由程的下限，因为非平衡热载流子的能量更高，其温度和速度也高于与晶格达到热平衡的状态 [7]。然而，对于不同电子态之间的平均自由程数值如何比较，理论上尚未达成共识。例如，考虑非弹性散射时，能级足够高的电子预计具有更长的平均自由程[14,15]。另一项理论研究则表明，导带底部的电子平均自由程更长，这是因为态密度较低，导致弛豫时间较长[16]。目前，所有用于测量平均自由程的实验方法都只能检测准平衡稳态下的载流子，其基本原理是提取载流子散射时间以及载流子热速度或费米速度 [17-22]。在非平衡态下实验测定平均自由程仍是一项尚未攻克的技术难题，阻碍了人们深入理解载流子输运物理。

为了测量非平衡 PMFP，我们

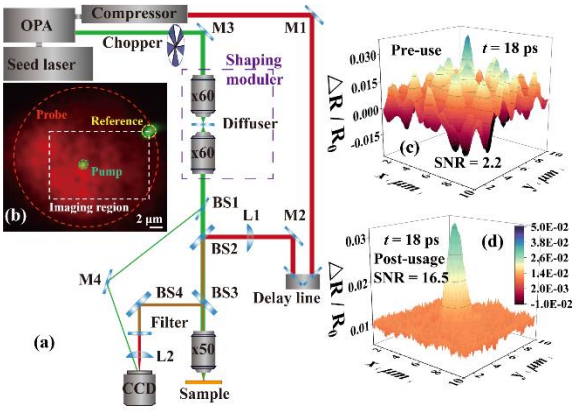


图 1. 实验装置示意图及 VLA 结果。（a）实验光路。参考光束由 BS1 和 M4 组成，整形模块包含两个高倍率物镜和一个漫射片。（b）相机的视场。（c）和（d）分别显示使用 VLA 前后，在 $\Delta R/R_0$ 处 $t = 18\ ps$ 时的反射图像信号。显然，在使用 VLA 之前，信号几乎被系统噪声淹没。得益于该技术，信噪比从 2.2 提高到 16.5，从而有效提取出载流子分布的准确高斯分布。

受到瞬态光栅光谱（TGS）的启发，[23], 该技术已实现对声子平均自由程的直接测量[24]。由于尺寸效应[25], ，当光栅周期的一半（等效输运长度）逐渐减小，并与 PMFP 相当或比其更短时，载流子输运状态将从扩散转变为弹道输运，呈现出不同的输运和信号行为，因此我们可以根据这种明显的转变直接提取 PMFP。然而，受衍射极限的影响，在常见的光学实验系统中，光栅周期难以达到非常微小的尺寸。此外，为了观察逐渐偏离扩散输运行为的趋势，需要反复改变光栅周期，这大大增加了耗时和操作难度。 幸运的是，我们发现，通过进行散斑激光泵浦 - 傅里叶显微探测测量，可以有效解决上述所有问题。

本文提出一种名为瞬态傅里叶显微术（TFM）的技术，用于测量非平衡光子平均自由程。该方法对 散斑激光泵浦-探测反射图像信号进行傅里叶变换，提取不同波矢下振幅演化的特征衰减时间，从而获得光激发热载流子的动态输运信息。考虑到 TFM 涉及面探测，且要求以高保真度记录载流子空间分布的细节，我们结合了一种虚拟锁相放大技术（VLA），该技术利用弱信号的频率和相位特征，从噪声中解调出被淹没的弱信号。利用我们提出的 TFM 方法，我们成功地（也“颇令人惊讶地”）测得厚度为 $2\mu m$ 的硅膜的 PMFP 为 ~ 0.65μm，砷化镓量子阱的 PMFP 为 ~ 1.25μm。这项工作为实验测量 PMFP 提供了新思路，并有望极大增进我们对许多光电子或光子材料中载流子输运的理解。

散斑激光泵浦 - TFM 的概念与 TGS 类似：通过测量波矢 q 对正弦波衰减的影响来获取输运信息。然而，考虑到 TGS 只能测量由两个泵浦脉冲干涉产生的一个特定正弦波的演化过程，即对应于单个密度光栅，而散斑激光泵浦 - TFM 只需对不同时间延迟下的载流子分布图像进行傅里叶分析，即可同时获取多个正弦波，因此 TFM 的优势便显现出来。同时，散斑泵浦激光的微小尺寸可以扩大波矢范围，这意味着分解光栅的尺寸分布更加广泛。

如图 1(a) 所示，该实验装置是在传统的超快泵浦-探测反射显微术基础上加入参考光和整形模块构成的。我们提出的 VLA 包括信号输入、参考信号采集和相敏检测，可在光学调制频率 $f = 10\ Hz$ 下实现超窄带解调。这种方法可将信噪比（SNR）提高七倍以上（见图 1(c) 和图 1(d)），从而在超快时间尺度上准确呈现载流子分布，并有效实现弱能量密度泵浦测量。详细介绍见补充材料 [26]。 所有测量均在室温下进行。

为从原理上验证 TFM 的可行性，我们首先通过数值模拟进行了测试。我们生成了一系列图像，展示光生载流子随时间发生的随机扩散（见图 2(a) 和图 2(b)）。假设能量载流子在 $t = 0$ 处的初始分布为位于 $(x, y) = (0,0)$ 的 δ 函数，那么任意后续时刻 t 的分布将为高斯函数，$n\ x\ y\ t = exp\ -t/\tau\ \cdot 1/4\pi Dt \cdot exp\ -\ x^2 + y^2\ /4Dt$ (, ,) ( ) (( ))，其中预设的扩散系数为 $D = 1$ ，载流子寿命为 $\tau = 10^3$。接下来，对这些图像进行傅里叶变换，以提取不同波矢 q 下振幅的演变。每个 q 对应的振幅都将呈指数衰减，其衰减率

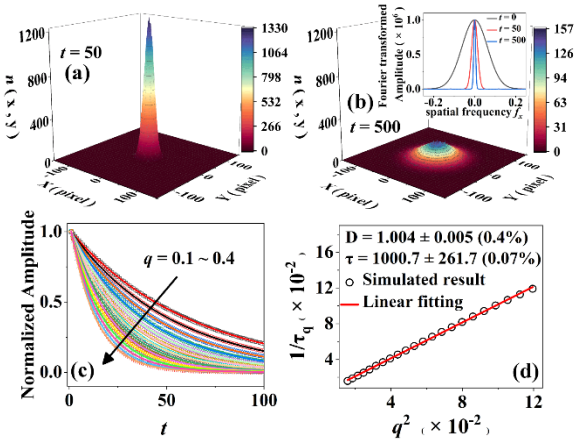


图 2. TFM 的数值模拟结果。(a) 和 (b) 分别为 $t = 50$ 和 $t = 500$ 时光生载流子的分布。插图显示了沿 x 轴不同空间频率下傅里叶变换振幅随时间的变化。(c) 不同波矢 q 下归一化振幅谱的演变。(d) q = 0.1~ 0.4 处的拟合结果。

由有效扩散系数 D 与波矢平方 q^2 的乘积决定，这与此前单波矢 TGS 实验 [24,28]中的表征一致:

$$\left|FFT.\left(n(x,y,t)\right)\right| = Amp(q,t) = A_0(q)\cdot e^{-t/\tau}\cdot e^{-Dq^2t} + B(q) \quad (1)$$

其中A_0（q）是反射信号的振幅$\Delta R/R_0$ 在初始时刻，术语$e^{-t/\tau}$ 描述了光激发后的载流子弛豫，其中包含由载流子复合导致的衰减信息；术语e^{-Dq^2t}描述了由于载流子从峰值向谷值输运而导致的瞬态光栅展宽，而 B（q）是与时间无关的系统背景噪声。图 2(c) 显示了波矢 q 从 0.1 到 0.4 变化时归一化振幅谱的衰减。显然，随着时间t 的增加，振幅逐渐减小，这与光生载流子的时空演化一致。在激光激发的瞬间，注入泵浦区域的载流子浓度最高，随后向外扩散，同时因电子-空穴复合而逐渐消失。傅里叶变换正是将这一高斯分布载流子的扩散-复合过程分解为多个相互独立的正弦瞬态光栅的衰减过程。根据 TGS[23] 或式（1），特征光栅衰减时间τ_q 为

$$\frac{1}{\tau_q} = Dq^2 + \frac{1}{\tau} \quad (2)$$

我们在图 2(d) 中汇总了不同波矢 q 下的特征时间 τ_q。线性拟合的斜率为扩散系数 D (1.004 ± 0.005)，而截距的倒数给出了载流子寿命 τ (1000.7 ± 261.7)。相对误差在 0.4% 以内，这证实了 TFM 的有效性和可靠性。

根据傅里叶变换，波矢的有效范围 q与光生载流子的形态有关。对于高斯光束激发，可分辨的最大波矢 $q_{max} = 2\pi/w$，其中 w是作用于材料上的泵浦光束宽度。从理论上讲，理想情况下应使用强度高且光斑锐利的高斯泵浦光束，因为它不仅能提供较宽的 q 范围，还能产生振幅较大的光生载流子光栅。然而，这种高强度激光束容易损伤样品。因此，我们提出了一种更好且实用的方法：使用漫射片简单生成并广泛分布于成像区域内的随机激光散斑作为泵浦光（见图 S1(a) 和图 S1(b) [26]）。这样，我们便利用更大的周边区域，在不损伤样品的情况下产生与所需的强锐利高斯光束相近数量的光生载流子。由于 多光束干涉以及较大的角谱分量，散斑的尺寸（即子光斑）通常可以小于由轴上低角谱高斯光束直接形成的最小光斑尺寸。因此，散斑激光泵浦意味着更大的 q_{max}，从而更有可能达到光生载流子的弹道输运区域。

借助 VLA，我们使用 TFM 分析分别由高斯光束和重塑后的散斑光束激发的 2μm 厚硅膜中的光生载流子输运。图 3(a) 和图 3(b) 分别展示了三个不同波矢 q 下归一化振幅谱的衰减情况，它们均呈现出预期的指数衰减模式。在图 3(c) 中，红色方块表示高斯泵浦的傅里叶振幅衰减率，黑色圆圈表示散斑泵浦的衰减率。与高斯光束相比，散斑具有更小的子光斑尺寸和更复杂的形态，因此其 q 范围更宽，为 q_{max} = 6.7 μm^{-1}。通过拟合 q = 1.1 ~ 4.8 μm^{-1} 处的线性扩散区域，高斯泵浦情况下的双极扩散系数为 D_{G-Si} = 9 5 ±。，0 2 cm^2/s 载流子寿命为 τ_{G-Si} = 2 9 ± 0 5 ns；而在散斑泵浦激发下，D_{S-Si} = 9 6 ±。，0 3 cm^2/s 以及 τ_{S-Si} = 2 3 ± 0 7 ns 。。。在高斯泵浦下采集的同一组原始数据

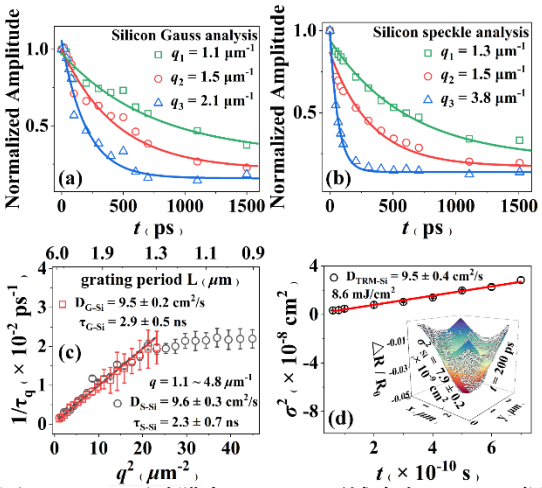


图 3。2μm 厚硅膜在 515nm 泵浦光和 650nm 探测光下的实验结果 。(a) 和 (b) 分别展示了高斯泵浦和散斑泵浦下归一化振幅谱的演化。(c) 通过 TFM 获得的实验结果，其中散斑泵浦（黑色空心圆）展示了载流子输运从扩散向弹道输运转变的过程 。(d) 在高斯泵浦下，利用同一组原始数据通过瞬态反射显微术获得的结果。插图为在处的

2 t = D

200 ps

高斯分布拟合结果。

也通过瞬态反射显微术进行了分析[13], 测得的扩散系数 D_{TRM-Si} = 9 5 ± 0 4 cm^2/s 3 .., 如图 (d) 所示，与 TFM 得到的结果一致。此外，我们还进行了多次单波矢 TGS 实验，结果一致（见图 S5 [26]）。我们测得的所有扩散系数均接近文献报道值[28,29]。此外，这些测得的载流子寿命也接近τ_{PP-Si} (2 6 ± ..)泵浦-0 3ns 探测技术测得的结果（见图 S6 (a) [26]）。我们已验证泵浦-探测实验响应与泵浦通量呈线性关系（见图 S7 (a) 和图 S7 (b) [26]），这确保了在我们的实验中，激发载流子密度范围（1.4 ~ 5.7 × 10^{20} cm^{-3}）内的载流子寿命和扩散系数保持恒定。以上结果均成功证实了我们所提出的 TFM 的可行性。

在图 3(c) 中，一个波矢 q 对应一个周期为 L 的载流子光栅（上方坐标轴）。当光栅周期的一半（$L/2$）小于 PMFP 时，光生载流子会直接从光栅峰值移动到相邻的波谷，而不参与任何散射。这种弹道运动不会与环境相互作用，并保持较低的有效密度通量，导致有效扩散系数降低，这种现象称为尺寸效应 $L/2$,

从图 3(c) 可以直观地看出，随着周期 L 减小，载流子输运状态确实会从扩散转变为弹道输运，同时有效扩散系数趋于降低。这一转变，即偏离扩散斜率的现象，发生在约 L_{cross} = 1.3 μm 处。根据准弹道电子输运理论，有效载流子扩散系数可表示为 [26]:

$$D_{eff} = C \cdot \frac{l}{l+MFP} = \begin{cases} C \cdot l/MFP & (l \ll MFP) \\ C & (l \gg MFP) \end{cases} \quad (3)$$

其中，C 为扩散区间的扩散系数，l 表示输运特征长度。对于我们的系统，l 对应于半个光栅周期，因为载流子的源极和漏极分别等效于光栅的波峰和波谷。在图 4(a) 中，我们将有效扩散系数 D_{eff}（图 3(c) 中数据的斜率）绘制为 l 的函数，得到 D_{eff} 明显的“尺寸效应”行为，与公式 (3) 高度一致。图 4(a) 所示的转变点表明，硅中光生载流子的时域和模态平均平均自由程 $PMFP_{Si}$ 为 ~ 0.65μ m（$L_{cross}/2$）。我们意识到，在双极输运条件下测得的 0.65μm 光生载流子平均自由程，其输运特性主要由运动较慢的载流子（硅中的空穴）所决定；从传统“局域平衡稳态”的角度来看，这一数值对于载流子平均自由程而言大得惊人。实际上，我们采用四探针法测量了硅样品的电阻率，并结合参考迁移率推导出电子/空穴平均自由程仅为 ~44/17 nm [26]。但我们也注意到，$PMFP_{Si}$ 的 0.65μm 接近硅膜中的声子平均自由程 [24], , 这与相关报道一致：在硅的高温条件下，载流子和声子的平均自由程处于同一数量级 [30]。本文研究的光生载流子是占据能带高能级的激发态热载流子，其电子温度通常在数千 K 量级 [31]。我们的结果证实，这些高能光生载流子在瞬态、高度非平衡输运过程中，其平均自由程可以显著大于通过电学方法确定的平均自由程；后者仅反映费米能级或带边附近的准平衡载流子 [30, 32]。

我们还表征了光生载流子输运

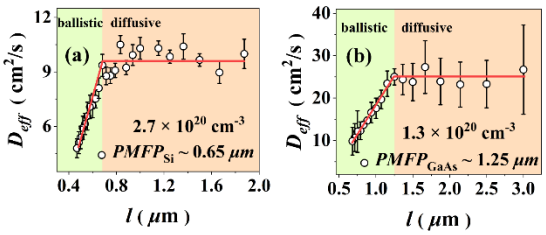


图4. (a) 2μ 米厚硅膜和 (b) 砷化镓量子阱的有效扩散系数 D_{eff} 随输运特征长度 l 的变化。初始浓度下的光生载流子分别为 2.7 ×10^{20} cm^{-3} 和 1. 3 × 10^{20} cm^{-3}。

在砷化镓量子阱中，该量子阱由十个周期组成，每个周期包含厚度为 15纳米的砷化镓阱层和厚度为 185纳米的铝$_{0.3}$镓$_{0.7}$砷化镓势垒，其中δ掺硅层位于除第二个势垒外的每个势垒中心[33]。我们选择了 515纳米泵浦脉冲和 850纳米探测脉冲，详细实验结果见补充材料 [26]。从图 4(b) 中，我们可以得出 $PMFP_{GaAs}$ ~ 1。25 μm。根据第一性原理计算 [15], ，在 300 K 下，砷化镓中电子在低场输运 regime 下的平均自由程约为 130~210纳米。该计算非常适用于描述电输运测量中的局域平衡条件，包括基于霍尔效应的方法 [18], 、四端配置 [19] 以及导电原子力显微镜 [20,21]。因此可以推断，通过我们的 TFM光学方法获得的 PMFP（1.25 μm）再次远大于电学方法测得的数值（约 10 倍）。我们的发现表明，硅的 PMFP 短于砷化镓。这主要归因于硅具有更大的有效载流子质量 [26] 和间接带隙结构，从而增强载流子-声子散射并降低迁移率。一般而言，迁移率较低的材料往往表现出较弱的弹道效应 [25]。

鉴于我们的实验结合了强激发和超快探测技术，w我们认为，以下机制中的任一种或它们的共同作用，都可能是测得较大 PMFP 的原因，但目前尚无确凿证据仍有待进一步深入研究。 i) 由于采用了较大的单脉冲能流密度，光激发注入的载流子浓度极高（> 10^{20} cm^{-3}），从而产生库仑屏蔽 [34, 35] , 减弱了载流子与极性声子之间的散射，进而使 PMFP 相对较长。此外，由于载流子是光生而非电离产生的，我们的测量中不存在载流子-带电杂质散射。ii) 处于高能非平衡态的热电子温度较高，这扩大了范围，使更多具有较大群速度的载流子能够参与输运过程 [36]。iii) 由 515nm 激光产生的载流子具有较高动能；该激光的能量远高于硅和砷化镓的带隙。相空间限制和声子瓶颈效应抑制了通过载流子-声学声子相互作用实现的能量弛豫通道，并延长了散射时间 [37], , 从而增大 PMFP。

总之，我们提出并验证了一种准确、高效的 PMFP 测量技术，即散斑泵浦–热反射法。通过将泵浦光整形成散斑的创新设计，该技术能够覆盖从弹道输运到载流子扩散输运的范围，并成功测得硅膜的 PMFP 为 ~ 0.65μ 米，砷化镓量子阱的 PMFP 为 ~ 1.25μ 米。这些结果表明，高能光生载流子的平均自由程可能比费米面附近或带边附近局域平衡载流子的平均自由程大一个数量级，从而更新了我们对高度非平衡光生载流子输运行为的认识。

本工作得到以下项目的支持：国家重点研发计划项目（编号：2023YFB4603801）；国家自然科学基金（编号：52176173和21FAA02809）；广东省创新创业团队项目（编号：2021ZT09L227）；广东省基础与应用基础研究基金（编号：2020A1515110192、2022A1515010710和2023B1515040023）。所报道的实验部分在广东省磁电物理与器件重点实验室完成。项目编号：2022B1212010008。

*通讯作者：chenk35@mail.sysu.edu.cn
[1] J. Yang、X. Li、J. Gu、F. Yu、J. Chen、W. Lu 和 X. Chen，Coatings 15, 301 (2025)。[2] A.Y. Joe 等，Physical Review Letters 132, 56303 (2024)。[3] M. Friedl 等，Nano Letters 20, 3577 (2020)。

[4] B.F. Levine、C.G. Bethea、G. Hasnain、J. Walker、R.J. Malik和J.M. Vandenberg，Physical Review Letters 63，899（1989）。[5] X. Li、J. Chen、F. Yu、X. Chen、W. Lu和G. Li，Nano Letters 24，13255（2024）。[6] J. Seok、Y. Jin和K. Yu，Optics Express 31，38578（2023）。[7] H. Zhang和M. Alexe，Communications Physics 5，326（2022）。[8] Z. Gu等，Physical Review Letters 118，96601，1（2017）。[9] C.A. Nelson、N.R. Monahan和X.Y. Zhu，Energy & Environmental Science 6，3508（2013）。[10] S.B. Astafiev、V.M. Fridkin、V.G. Lazarev和A.L. Shlensky，铁电学 83，3（1988）。[11] G. Lo Gerfo Morganti、R. Rosati、G.D. Brinatti Vazquez、S. Varghese、D. Saleta Reig、E. Malic、N.F. van Hulst和K. Tielrooij，Nature Communications 16，5184（2025）。[12] P. Karna、M.R. Islam、E.R. Hoglund、P.E. Hopkins和A. Giri，Materials Today Chemistry 37，101991（2024）。[13] P. Karna、M.S.B. Hoque、S. Thakur、P.E. Hopkins和A. Giri，Nano Letters 23，491（2023）。[14] D.R. Penn，Physical Review B 13，5248（1976）。[15] T. Liu、J. Zhou、B. Liao、D.J. Singh和G. Chen，Physical Review B 95，75206（2017）。[16] M. Bernardi、D. Vigil-Fowler、J. Lischner、J.B. Neaton和S.G. Louie，Physical Review Letters 112，257402（2014）。[17] P.R. Whelan等，Scientific Reports 14，3163（2024）。[18] N. Armakavicius等，Carbon 172，248（2021）。[19] D. Burrow、J.C. Toscano-Figueroa、V.H. Guarochico-Moreira、K. Omari、I.V. Grigorieva、T. Thomson和I.J. Vera-Marun，Communications Materials 6，33（2025）。[20] H. Zhong、Z. Liu、J. Wang、A. Pan、G. Xu和K. Xu，Physical Review Materials 2，1（2018）。[21] X. Zhou、S.A. Dayeh、D. Aplin、D. Wang和E.T. Yu，Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena 24，2036 (2006). [22] K. Ishizaka 等，Physical Review B 77, 64522 (2008). [23] U. Choudhry、T. Kim、M. Adams、J. Ranasinghe、R. Yang 和 B. Liao，Journal of Applied Physics 130, 231101 (2021). [24] J.A. Johnson、A.A. Maznev、J. Cuffe、J.K. Eliason、A.J. Minnich、T. Kehoe、C.M.S. Torres、G. Chen 和 K.A. Nelson，Physical Review Letters 110, 25901 (2013). [25] K. K·Ng 和 S. M·Sze，《半导体器件物理》（Wiley，2007）。[26] 有关实验装置和结果、虚拟锁相放大技术、尺寸效应理论、四探针法结果以及砷化镓量子阱数据的更多详情，请参阅补充材料，其中包括参考文献 [27]。[27] H. Zhao、M. Mower 和 G. Vignale，Physical Review B 79, 115321 (2009). [28] J. Shin 等，科学 377, 437, 1 (2022). [29] C. Jacoboni、C. Canali、G. Ottaviani 和 A. Alberigi Quaranta，Solid-State Electronics 20, 77 1977( ). [30] L. Weber 和 E. Gmelin，Applied Physics A: Solids and Surfaces 53, 136 (1991). [31] D. Sangalli 和 A. Marini，Journal of Physics: Conference Series 609, 12006 (2015). [32] C. Gang，《纳米尺度能量传输与转换：电子、分子、声子和光子的平行处理》（牛津大学出版社，2005）。[33] K. Chen、W. Wang、J. Wu、D. Schuh、W. Wegscheider、T. Korn 和 T. Lai，Optics Express 20, 8192 (2012). [34] J. Bigot、M.T. Portella、R.W. Schoenlein、J.E. Cunningham 和 C.V. Shank，Physical Review Letters 67, 636 (1991). [35] K.T. TSEN，《半导体中的超快物理过程》（学术出版社，2001）。[36] B. Qiu、Z. Tian、A. Vallabhaneni、B. Liao、J.M. Mendoza、O.D. Restrepo、X. Ruan 和 G. Chen，Europhysics Letters 109, 57006 2015( ). [37] J. Fast、U. Aeberhard、S.P. Bremner 和 H. Linke，Applied Physics Reviews 8, 21309 (2021).

补充材料：
通过散斑激光泵浦-瞬态傅里叶显微探测测量光生载流子平均自由程

Zuni Luo，[1,2] Yifan Zhang[1,2], Jie Wei[2], Zhikun Xie[2], Tianshu Lai[2], 和 Ke Chen[1,2,*]

[1]中山大学物理学院中子科学与技术中心、广东省磁电物理与器件重点实验室，510275，中国广州[2] 中山大学物理学院光电子材料与技术国家重点实验室，510275，中国广州

[*]通讯作者：chenk35@mail.sysu.edu.cn

实验装置：

如图 1(a) 所示，该实验装置是在超快泵浦-探测反射显微术中加入参考光和整形模块。使用种子激光器（1030nm，< 190 fs，200 kHz，100 μJ/脉冲，PHAROS，Light Conversion）泵浦光学参量放大器（OPA，ORPHEUSF，Light Conversion），以产生激发脉冲或探测脉冲。由 OPA 直接输出的倍频晶体产生 515nm 泵浦光束；而 650nm（用于硅膜）和 850nm（用于砷化镓量子阱）探测光束则经简单的棱镜式压缩器后输出（< 55 fs）。泵浦光束经准直后进入成像物镜（MPAL，50×，Cossim）；探测光束经过延迟线（ILS200，Newport）后，由透镜 L1（焦距 = 1000 mm）预聚焦，再进入物镜以实现宽场探测。携带样品载流子弛豫动力学信息的反射探测光束由物镜收集，并由筒镜 L2（焦距 = 200 mm）聚焦到电荷耦合器件（ME2P - 2622 - 15U3M NIR，大恒图像）上进行成像。部分经调制的泵浦光束由分束器 BS1 引出，再反射至视场边缘作为参考光，如图 1(b) 所示。矩形成像区域需由探测光束充分照明，而参考光束应位于远离反射图像信号的角落。泵浦光束位于方形图像的中心；该图像通过后期裁剪参考光束获得，并用作瞬态傅里叶显微分析的原始数据。将漫射片放置在两个物镜（HK，60×，衡阳）的焦平面处，使泵浦光束整形成平均尺寸为 423nm 的散斑，如图 S1(a) 和图 S1(b) 所示。 在我们的实验中，图像尺寸设为 600×600 像素。

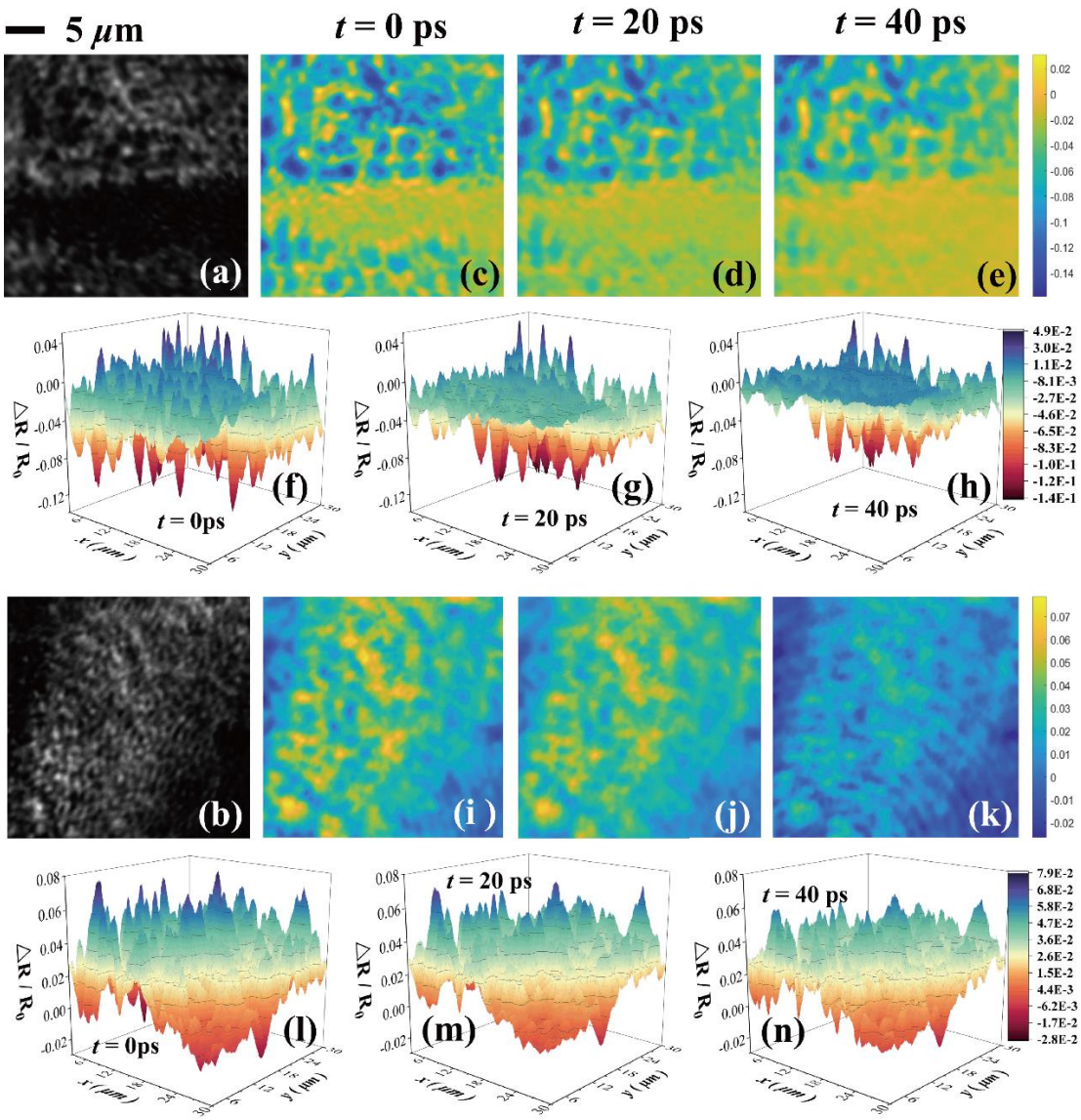


图 S1. 散斑泵浦下不同时刻光生载流子的分布。(a) 和 (b) 分别为散斑泵浦在厚度为 2μm 的硅膜和砷化镓量子阱上的形貌。(c)-(e) 展示了 $t = 0\ ps$、 $t = 20\ ps$ 和 $t = 40\ ps$ 时的硅反射成像信号。由于硅的电子信号为负值，这意味着光生载流子会导致反射率降低，因此蓝色所示的负值代表载流子分布。 (f)-(g) 为对应的三维视图，其中红色表示负值，表明不同时刻光生载流子的分布。(i)-(k) 展示了砷化镓量子阱中载流子在三个不同延迟时刻的扩散。砷化镓量子阱的电子信号为正值，因此载流子分布对应于黄色的正值区域。 三维视图 (l)-(n) 展示了相应时刻光生载流子的分布，以蓝色正值表示。显然，散斑泵浦的形貌与光生载流子的分布一一对应。随着时间推移，两种材料中的载流子逐渐向外扩散，同时也因复合而消失。以上所有图像的长度尺度相同。

虚拟锁相放大技术：

信号输入由显微成像系统中的面阵相机获取。在固定延迟线条件下连续拍摄一系列图像，然后提取每个像素随时间变化的强度，即可一次性采集多个具有空间分布特征的泵浦-探测信号。考虑到泵浦光束激发的反射图像信号会随信号变化而改变，不能忽略噪声的相位干涉。对于参考信号采集，我们采用提取泵浦光束的方案，以确保参考光足够强，能够实时记录泵浦光束的调制。参考光与输入信号具有相同的频率和相位，因此可有效避免光调制器频率不稳定、丢帧等系统误差的影响。值得注意的是，参考光的成像位置应远离泵浦光束作用区域，以避免对信号产生干扰。此处，我们将相机帧率设为最大值，以确保能够分辨斩波器的调制效果；曝光时间设为 6 ms，使单帧内泵浦激光诱导的反射平均 1200 次，从而有效增强反射信号并抑制背景噪声。同时，拍摄时长控制在一万帧，这相当于在相关计算积分公式中，将输入视为近似无限时长的周期信号。相敏检测通过对这两个信号执行相关运算，从而利用具有空间分布特征的泵浦-探测信号，将某一时刻的载流子分布可视化，

$$n(x,y,t)=\frac{\Delta R(x,y,t)}{R_0(x,y,t)}=\frac{\int_{t=0}^{t=T} I_{pump}(x,y,t)\cdot I_1(x_1,y_1,t)dt}{\int_{t=0}^{t=T} I_{probe}(x,y,t)\cdot I_2(x_2,y_2,t)dt} \tag{S1}$$

其中，$n(x,y,t)$表示坐标(x,y)中时间 t 的载流子分布。泵浦光束经斩波器调制后，$I_{pump}(x,y,t)$记录了时间 t 在位置坐标(x,y)处采集图像的灰度值，$I_1(x_1,y_1,t)$表示同一图像中参考光区域内某一位置在坐标(x_1,y_1)处时间 t 的灰度值；该参考光被反射至视场边缘，用于反映调制泵浦光束随时间的变化过程。坐标(x_1,y_1)可在记录参考光的空间范围内随机选取。信号 $\Delta R(x,y,t)$是这两项在从 $t=0$ 到 $t=T$的时间段内进行相关运算得到的结果。$I_{probe}(x,y,t)$表示遮挡泵浦光束并调制探测光束后，在时间 t 拍摄的图像中位置坐标(x, y)处的灰度值；$I_2(x_2,y_2,t)$是时间 t 拍摄图像中固定坐标(x_2,y_2)处的灰度值。该坐标可在成像区域内任意选取，用于记录探测光束随时间的变化。同样地，对这两项在从 $t=0$ 到 $t=T$ 的时间段内进行相关运算，可得到背景 $R_0(x,y,t)$。为避免因延迟线准直不严格而引入虚假的动态信号，建议在每个时间间隔分别采集信号和背景的一系列视频序列。如公式(S1)所示，探测光束必须完全照亮成像区域，以确保覆盖完整，从而避免分母为零。具体而言，参考信号 $I_1(x_1,y_1,t)$和$I_2(x_2,y_2,t)$经过归一化处理，并去除振幅的直流分量；同时，将灰度值 ≥ 0 设为 1，将低于零的值设为 -1。

图 S2(a) 和 S2(b) 分别显示了信号 $\Delta R(x,y,t)$和背景$R_0(x,y,t)$的周期。在图 S2(a) 中，红色虚线表示落在视场边缘的参考光 I_1，黑色实线表示使用频率为 f = 10 Hz 的斩波器调制泵浦光束后的探测光束信号 I_{pump}。显然，I_1 显示的方波具有不同的宽度并存在轻微偏差，这表明斩波器的频率不稳定性被连续记录下来。尽管信号 I_{pump} 看起来较为粗糙且包含大量系统噪声，但始终与I_1保持同步。图 S2(b) 展示了泵浦光束停止后调制探测光束时，采集图像中心 I_2 （红色虚线）和角落I_{probe} （黑色实线）的背景 R_0(x, y, t)，这同样反映出斩波器的调制频率不稳定，且信号高度同步。在我们的实验中，一个视频包含 715 个这样的周期。为便于对比观察，I_1 和I_2 的振幅已被放大至分别与I_{pump} 和I_{probe} 的振幅相近；而在实际算法中，I_1 和I_2 经过了归一化处理。

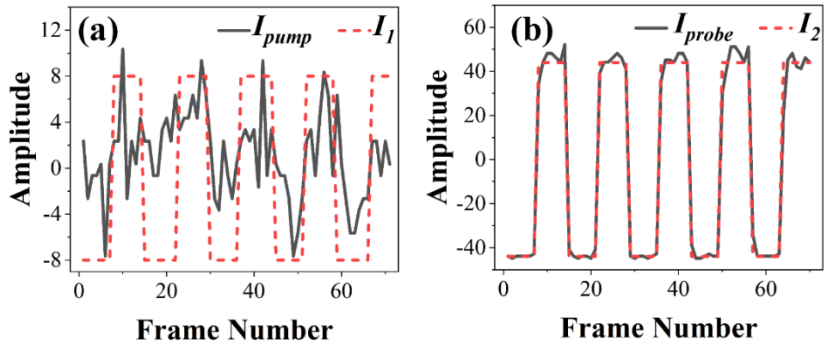


图 S2。虚拟锁相放大技术的原理。(a) 和 (b) 分别为信号$\Delta R(x,y,t)$和背景 $R_0(x,y,t)$的周期图，展示局部放大的结果，仅显示 5 个周期。

图 1(c) 和 1(d) 展示了采用虚拟锁相放大技术前后 $\Delta R/R_0$ 在 t = 18 ps 时的反射图像信号。泵浦光呈高斯形，砷化镓的电子信号为正，这意味着光生载流子会导致反射率增加，因此，不同时刻的载流子分布表现为正峰高斯形，对应于三维图像的中间区域。在图 1(c) 中，由于载流子在扩散的同时伴随复合，信号振幅减小，甚至低于背景噪声，导致信噪比过低，无法观察到扩散趋势。如图 1(d) 所示，采用虚拟锁相放大技术后，这一问题得到有效改善，信噪比从 2.2 提高到 16.5。这一结果有力地证实，所提出的虚拟锁相放大技术能够通过将信噪比提高七倍以上，检测淹没在噪声中的弱信号，从而有效实现弱能量密度泵浦测量，并更准确地呈现超快时间尺度上的载流子输运。图 1(c) 和图 1(d) 中的信噪比采用噪声标准差法计算，如图 S3 所示。

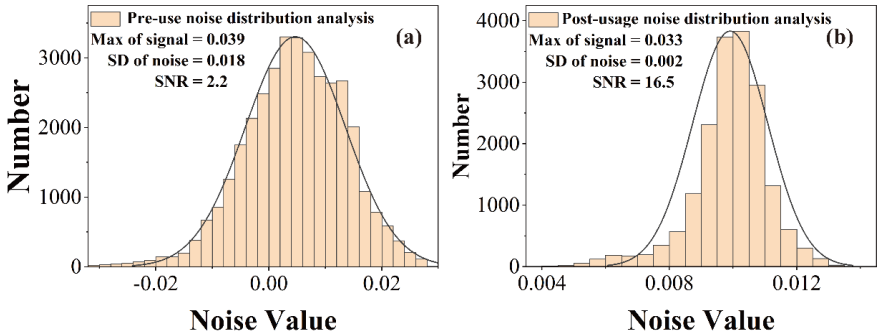


图 S3. 在 $t = 18$ ps 时，使用虚拟锁相放大技术前后 $\Delta R/R_0$ 的信噪比。信噪比通过噪声标准差法获得：对每个噪声信号进行采样，并以直方图的形式进行统计展示；随后用高斯分布拟合该分布，所得半峰全宽即为噪声标准差。具体而言，(a) 说明图 1(c) 中的噪声分布，(b) 对应图 1(d)。

弹道输运与扩散输运之间尺寸效应的理论：

在纳米器件中，当电子输运长度 l 短于或近似等于平均自由程 平均自由程时，电导测得为一个常数，称为弹道电导 G_B。它与电导 G的关系为

$$G = \frac{G_B \cdot MFP}{l + MFP} \tag{S2}$$

电导 G 与有效电导率 σ_{eff} 之间的关系表示为

$$\mathrm{G} = \frac{\sigma_{eff} \cdot A}{l} \tag{S3}$$

其中，A 表示导体的横截面积。在非简并半导体中，载流子遵循玻尔兹曼统计，其有效电导率 σ_{eff} 满足：

$$\sigma_{eff} = \frac{e^2 n_c}{k_B T} \cdot D_{eff} \tag{S4}$$

其中，玻尔兹曼常数 k_B、温度 T、电子电荷 e 和载流子密度 n_c 在同一系统中均为定值。对方程 (S2)–(S4) 积分后，有效扩散系数 D_{eff} 为

$$D_{eff} = \frac{k_B T G_B \cdot MFP}{e^2 n_c A} \cdot \frac{l}{l + MFP} \tag{S5}$$

由于这些参数在同一系统中保持不变，因此它们的乘积可以用一个常数代替。对于简并半导体，由于费米能级深处于能带内，载流子遵循费米–狄拉克统计。在这种情况下，方程（S4）可调整为：

$$\sigma_{eff} = e^2 \cdot \frac{\partial n_c}{\partial E_F} \cdot D_{eff} \tag{S6}$$

其中 $\frac{\partial n_c}{\partial E_F}$ 表示态密度填充因子，这也是一个常数项。通过理论推导，可以得出任意半导体中的有效载流子扩散系数：

$$D_{eff} = C \cdot \frac{l}{l+MFP} = \begin{cases} C \cdot l/MFP & (l \ll MFP) \\ C & (l \gg MFP) \end{cases} \quad \text{(S7)}$$

其中，C 是扩散区的扩散系数。方程（S7）有效地描述了载流子输运状态从弹道机制向扩散机制的转变。

根据尺寸效应，当输运长度 l 相对较大时，分母中的平均自由程 MFP贡献可以忽略不计。此时，$D_{eff} \approx C$ 保持恒定，表明载流子处于扩散机制。相反，当$l \ll$平均自由程时，分母中的l项可以忽略，因此得到$D_{eff} \approx C \cdot l/MFP$，其与$l$成正比，表明载流子处于弹道机制。需要强调的是，公式中的l项表示系统的输运特征长度。对于施加电压的器件，l对应于从源极到漏极的距离。对于我们的系统，l 对应于半个光栅周期，因为电子源可视为光栅结构的峰值，而电子漏可视为其谷值。

2μm厚硅膜的电子/空穴平均自由程（MPF），通过四探针法测得：

四探针法是将间距为 1mm的四根金属探针同时压在待测样品的平坦表面上。使用恒流源使小电流I流经探针1和探针4，然后测量探针2和探针3之间的电压V。样品的电阻率ρ 为

$$\rho = C_1 \frac{V}{I} \quad \text{(S8)}$$

其中，C_1 是四探针装置的修正系数；当探针位置和间距确定后，该系数为常数。采用此方法测得2μm厚硅膜的电阻率为21.9 Ω·cm。电导率σ是电阻率ρ的倒数，满足以下关系：

$$\sigma = \frac{1}{\rho} = n_c e \mu \quad \text{(S9)}$$

其中，μ 为迁移率。代入本征硅的参考值1400 $cm2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$后，可得相应的载流子浓度$n_c = 2.04 \times 10^{14}\ cm^{-3}$。对于这种非简并半导体，电子平均自由程表示为

$$MFP = \mu \frac{m^*}{e} \cdot \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m^*}} \quad \text{(S10)}$$

代入电子/空穴的有效质量 $m^* = 0.26/0.36\ m_0$ （其中 m_0 为电子静止质量）、玻尔兹曼常数 k_B 以及测量温度 $T = 300\ K$，可计算得到厚度为 2μm 的硅膜中电子/空穴的平均自由程为 ~ 44/17 nm。

表 S1. 硅和砷化镓中电子/空穴的有效质量

样品	电子	轻空穴	重空穴	空穴态密度
Si	0.26 m_0	0.16 m_0	0.49 m_0	0.36 m_0
GaAs	0.063 m_0	0.082 m_0	0.48 m_0	0.33 m_0

砷化镓量子阱的实验结果：

在图 S4(a) 和 S4(b) 中，不同波矢下的归一化振幅谱比硅膜衰减得更快，表明载流子扩散更迅速。在图 S4(c) 中，在扩散区域 $q = 0.8 \sim 2.5\ \mu m^{-1}$，高斯泵浦模式 D_{G-GaAs} $(24.9 \pm 3.3\ cm^2/s)$ 和散斑泵浦模式 D_{S-GaAs} $(25.7 \pm 1.0\ cm^2/s)$ 下得到的双极扩散系数，与通过瞬态反射显微术获得的数值 $D_{TRM-GaAs}$ $(25.1 \pm 0.7\ cm^2/s)$ 接近（见图 S4(d)）。测量值与文献值 [1] 一致。同时，载流子寿命 τ_{G-GaAs} $(2.3 \pm 1.6\ ns)$ 和 τ_{S-GaAs} $(2.4 \pm 1.1\ ns)$ 也与通过泵浦-探测技术测得的数值 $\tau_{PP-GaAs}$ $(2.3 \pm 0.3\ ns)$ 几乎一致（见图 S6(b)）。散斑泵浦可产生范围较大的有效波矢，达到 $q_{max} = 4.6\ \mu m^{-1}$。根据图 S4(c) 中实验衰减率再次明显偏离扩散斜率这一观察结果，我们可以推断，对于较大的 q，系统已成功进入弹道输运区域。在图 S4(d) 中，由于采用了虚拟锁相放大技术，信噪比的提升使得即使在较晚的延迟时间 $t = 2300\ ps$ 、仅剩极少量光生载流子的情况下，也能成功拟合载流子波包，这充分凸显了该技术的优越性和必要性。上述实验的激发载流子密度范围 $(1.0 \sim 4.9 \times 10^{20}\ cm^{-3})$ 均处于图 S7(c) 和图 S7(d) 所表征的线性区域内。

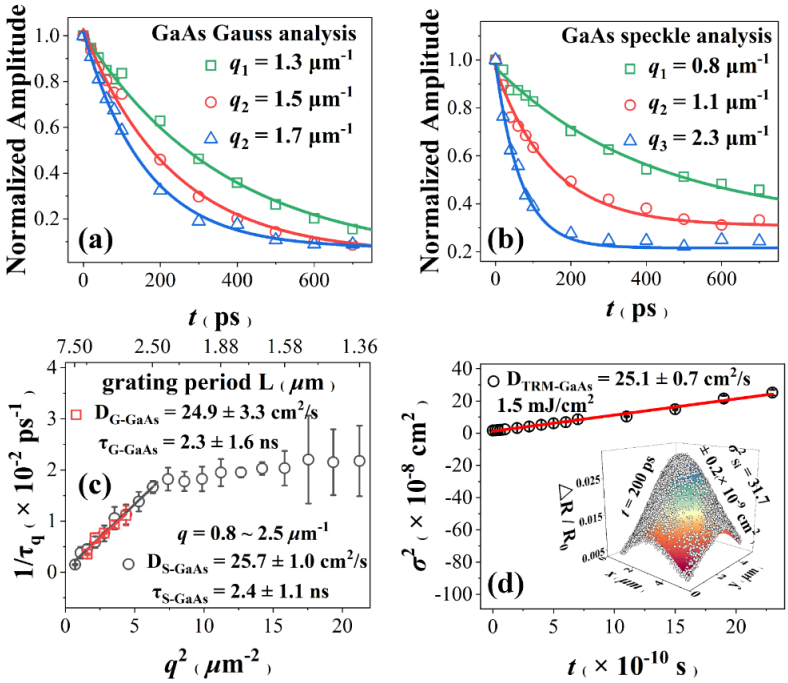


图 S4. 砷化镓量子阱的实验结果。(a)-(c) 为 TFM 的结果。(d) 是使用同一组原始数据获得的瞬态反射显微术结果。插图为 $t = 200\ ps$ 处二维高斯分布的拟合结果。

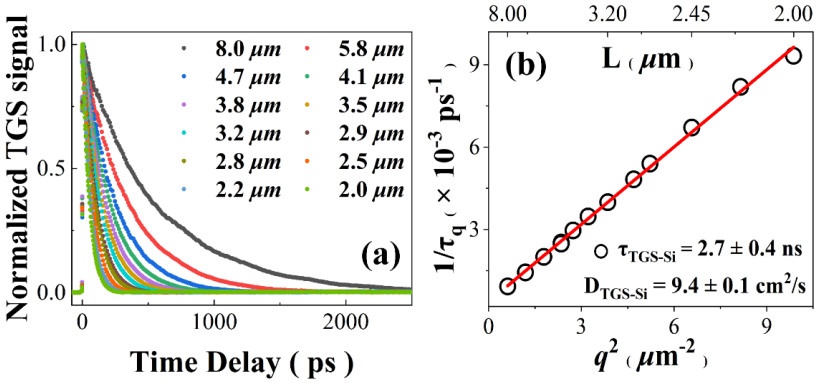


图 S5. 对厚度为 $2\mu m$ 的硅膜进行的瞬态光栅实验。(a) 不同光栅周期下归一化 TGS 信号的演变。(b) 光栅衰减率随波矢平方的变化，显示了载流子的扩散行为。

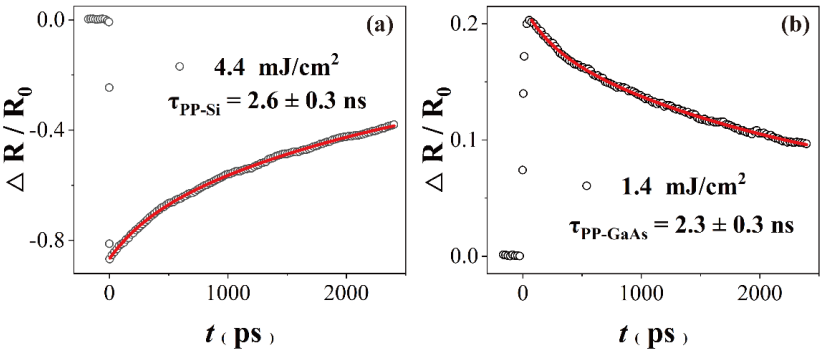


图 S6. 泵浦-探测技术测得的反射信号。这里，我们将长焦透镜 L1 放入泵浦光路，使成像区域内的泵浦光斑大于探测光斑，以确保探测光仅携带载流子的复合信息。对信号进行指数拟合后，我们得到：(a) 能流密度为 4.4 mJ/cm^2 时，厚度为 $\tau_{PP-Si} = 2m$ 的硅膜的载流子寿命 $6 \pm 0.3\ ns$ ；(b) 能流密度为 1.4 mJ/cm^2 时，砷化镓量子阱的 $\tau_{PP-GaAs} = 2.32 \pm 0.26\ ns$ 。

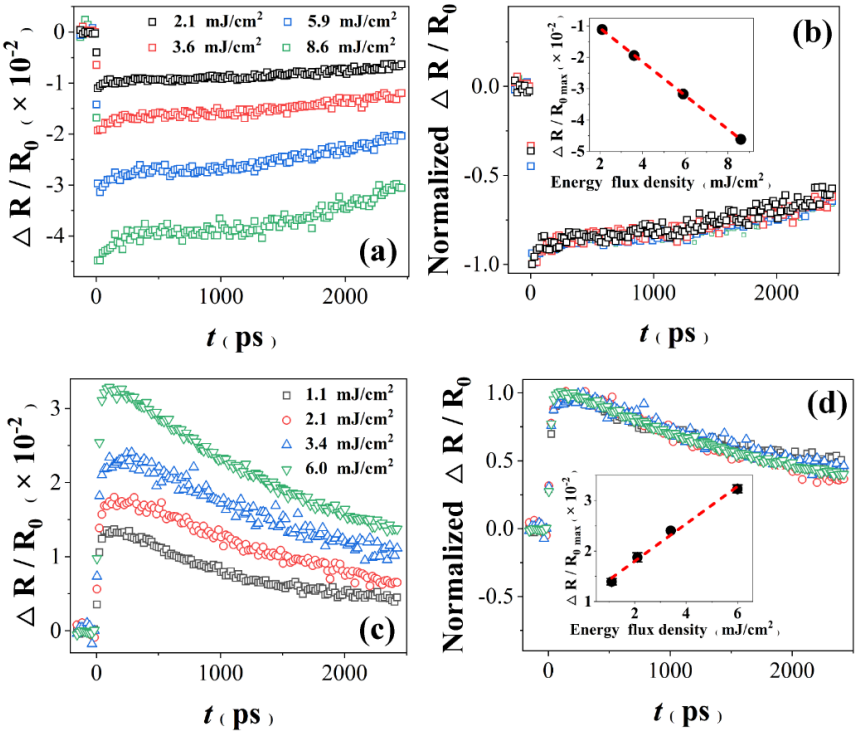


图 S7. 高斯泵浦在四种能流密度下的泵浦-探测反射信号。在高斯泵浦下，当泵浦光斑小于探测光时，采集了 (a) 中厚度为 $2\mu m$ 的硅膜和 (c) 中砷化镓量子阱的反射信号。归一化后，(b) 和 (d) 中的曲线重合，且极值呈线性关系，表明当硅的能流密度为 2.1 ~ 8.6 mJ/cm^2、砷化镓的能流密度为 1.1 ~ 6.0 mJ/cm^2 时，实验系统处于线性范围内。

*通讯作者：chenk35@mail.sysu.edu.cn

[1] H. Zhao、M. Mower 和 G. Vignale，Physical Review B 79, 115321 (2009)。