

# Ⅱ-Ⅱ多量子阱中局域化激子的受激发射\*

郑泽伟 石汉青

范希武 郑著宏 张吉英

(南京空军气象学院物理教研室 南京 211101) (中国科学院激发态物理开放研究实验室 长春 130021)

**提要** 通过对  $Zn_xCd_{1-x}Te-ZnTe$  多量子阱样品的光泵受激发射研究讨论了材料中激子局域态对受激发射激子过程以及受激发射特性的影响。两块不同组份和不同局域态密度的  $ZnCdTe-ZnTe$  多量子阱样品受激发射过程都是  $n = 1$  重空穴激子参与的一系列过程,但在  $Zn_{0.67}Cd_{0.33}Te-ZnTe$  中发现了激子-激子散射的受激发射过程,而在  $Zn_{0.78}Cd_{0.22}Te-ZnTe$  中没有发现这一受激发射的激子过程。 $x = 0.67$  的样品中具有较高的局域化激子密度,其受激发射具有较高的阈值。

**关键词** 多量子阱,局域化,激子,受激发射

## 1 引 言

Ⅱ-Ⅱ族半导体生长技术的发展为该半导体光电器件的研究和开发开辟了广阔的前景。近几年来,由于彩色显示、高密度光信息存储等方面的需要,使宽带Ⅱ-Ⅱ族光电器件特别是激光器的研究异常活跃。以前的工作主要集中在  $ZnSe$  基材料的研究方面。经过多年努力,终于在这类半导体的蓝-绿激光器的研究方面取得了很大的进展,特别是使其室温工作寿命得到了很大的提高,但距离市场化还比较遥远。其主要原因是高浓度的  $p$  型掺杂、欧姆接触以及有效的载流子与光限制的异质结构材料的制备等问题不能得到很好的解决。1993 年,普度大学的科学家们提出了一种解决欧姆接触问题的新方法,即采用了多层  $ZnSe-ZnTe$  的组份渐变区,但由于材料中缺陷问题因而没有达到预期的效果。目前为寻找这类激光器的突破口,有相当一部分科学家一方面从别的Ⅱ-Ⅱ族材料中寻找解决问题的办法<sup>[1,2]</sup>,另一方面研究这类材料的受激发射机理。

近年来,激子相关的受激发射机理,如非弹性激子-激子散射,激子-LO 声子散射已在  $ZnSe$  体材料或外延生长的  $ZnSe$ <sup>[3-5]</sup> 以及  $ZnCdSe-ZnSe$ <sup>[6]</sup> 和  $ZnCdS-ZnS$ <sup>[7]</sup> 多量子阱的受激发射过程中被发现。因为在准二维限制的情况下,激子束缚能得到了增强,而激子-LO 声子耦合被削弱<sup>[8]</sup>,所以 Ding 等<sup>[9]</sup> 指出,即使在室温情况下激子也能在光发射过程中起重要作用。而 Fujii 等<sup>[10]</sup> 通过对  $ZnSSe-ZnSe$  量子阱结构的研究发现了电子-空穴等离子体的受激发射机理。到目前为止关于  $ZnCdTe-ZnTe$  的受激发射机理还未见报道。本文通过 77 K 下的光泵受激发射实验研究了  $ZnCdTe-ZnTe$  多量子阱的受激发射机理,讨论了局域化激子在受激发射中的作用。

\* 空军基础理论课题资助项目。

## 2 实 验

实验所用样品为用常压 MOCVD 方法在 GaAs(100) 衬底上生长的含 30 个周期的  $\text{Zn}_{0.67}\text{Cd}_{0.33}\text{Te}(6\text{ nm})-\text{ZnTe}(6\text{ nm})$  多量子阱样品 A 和  $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Te}(6\text{ nm})-\text{ZnTe}(6\text{ nm})$  多量子阱样品 B。两样品的顶部生长了一层  $0.1\ \mu\text{m}$  的 ZnTe 覆盖层, 两样品的宽度约为  $2.4\text{ mm}$ , 样品的两解理面均相互平行, 且未蒸镀 F-P 腔。实验用 UV-24 型  $\text{N}_2$  激光器的  $337.1\text{ nm}$  线作泵浦光源, 用配有 RCA-C31034 型光电倍增管的 Spex 1404 型双光栅单色仪及 Boxcar-4400 型平均取样系统作光检测系统。做测试实验时将样品放在  $77\text{ K}$  下进行。

## 3 结 果

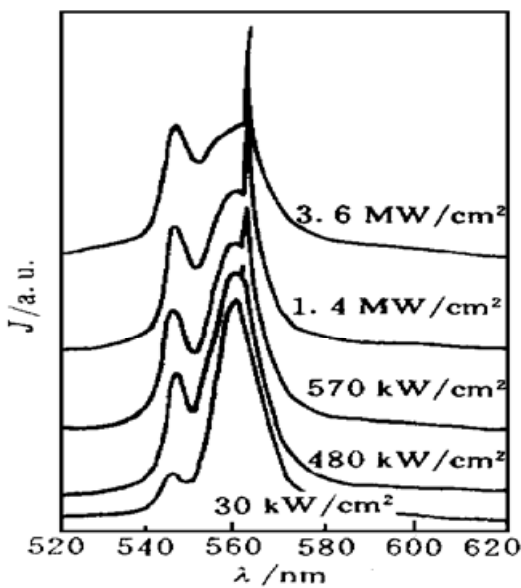


图 1 不同激发光强度下  $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Te}-\text{ZnTe}$  多量子阱的光发射谱, 测试温度为  $77\text{ K}$   
Fig. 1 Light emission spectra of  $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Te}-\text{ZnTe}$  multiple quantum wells at different excitation intensities, under  $77\text{ K}$

对样品 B 做光致发光实验, 不同激发光强度下样品的光发射谱图如图 1 所示。低激发光强度下样品的近带边有两个发光谱峰, 如图 1 中的最下一条谱线所示, 这两个发光谱峰分别位于  $559.8\text{ nm}$  和  $543.1\text{ nm}$  处。随激发光强度的增加, 在低能峰的低能侧逐渐地出现了一个新的发光锐峰, 该峰峰强随激发光强度增加的变化情况如图 2 所示。从图中可以看出, 在激发光强度不太大的情况下该峰的峰强 ( $I$ ) 随激发光强度 ( $J$ ) 的增加近似成  $I = J^k$  规律, 其中  $k = 3.6$ 。使样品 B 的解理面对准光谱仪的狭缝做光发射谱测量, 其光发射谱谱图如图 3 所示, 这时的激发光强度为  $600\text{ kW/cm}^2$ 。做样品 A 的光致发光实验, 其光致发光谱如图 4 中的下面一条谱线所示。该样品的近带边也有两个发光谱峰, 它们分别位于  $574.4\text{ nm}$  和  $598.6\text{ nm}$  处。随激发光强度的增加, 在样品高能峰的低能侧逐渐出现了一个新的发光锐峰, 如图 4 上面一条谱线所示, 新发光锐峰强度随激发光强度的变化如图 5 所示。

## 4 讨 论

样品 B 的两个近带边光致发光谱峰被分别归结为  $n = 1$  ( $559.8\text{ nm}$  处) 和  $n = 2$  ( $543.1\text{ nm}$  处) 的重空穴激子发光\*, 如图 1 所示。在较高激发光强度下  $n = 1$  激子峰的低能侧逐渐地出现了一个新的发光锐峰, 由图 2 看出该发光锐峰的强度随激发光强度超线性地增加。谱线的窄化和强度的超线性增加说明该发光锐峰为受激发射峰。随激发光强度的增加, 受激发射峰强度以及  $n = 1$  和  $n = 2$  激子峰的相对强度都发生变化。当激发光强度增加到  $3.6\text{ MW/cm}^2$  时,

\* 郑伟, 硕士学位论文.  $\text{ZnCdTe}-\text{ZnTe}$  多量子阱光发射特性的研究. 中国科学院长春物理研究所, 1996 年 7 月. 39

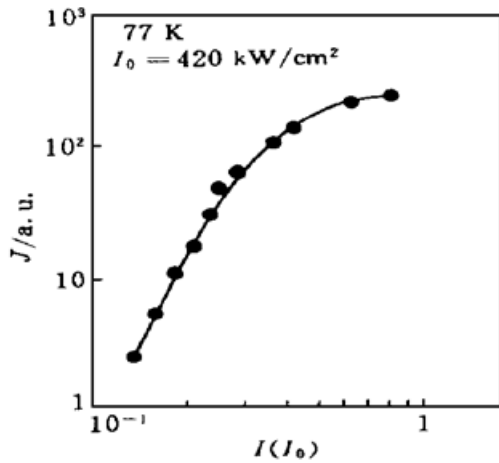


图 2 77 K 下  $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Te-ZnTe}$  多量子阱受激发射强度随激发光强度的变化

Fig. 2 Intensity of stimulated emission in  $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Te-ZnTe}$  multiple quantum wells as a function of excitation intensity, at 77 K

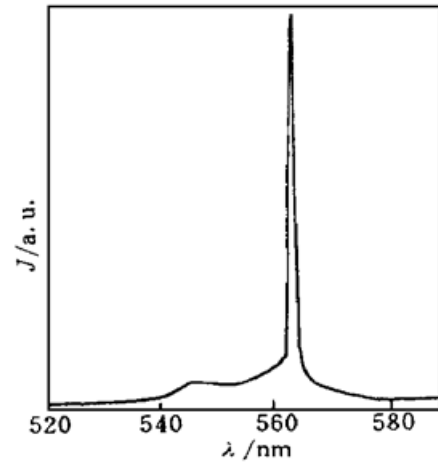


图 3 激发光强度为  $600 \text{ kW/cm}^2$  时  $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Te-ZnTe}$  多量子阱的受激发射谱, 测试温度为 77 K

Fig. 3 Stimulated emission spectrum of  $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Te-ZnTe}$  multiple quantum wells at a excitation intensity of  $600 \text{ kW/cm}^2$ , under 77 K

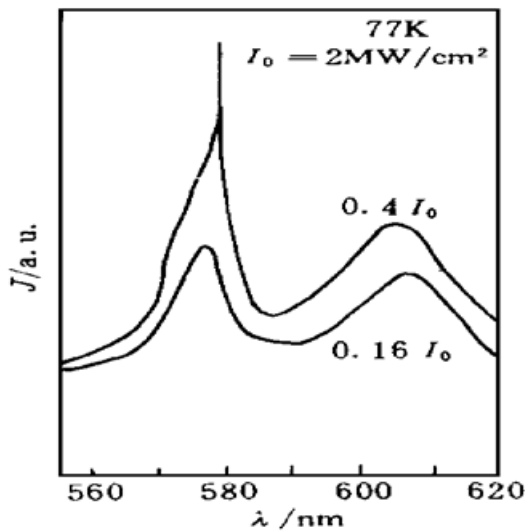


图 4 77 K 下,  $\text{Zn}_{0.67}\text{Cd}_{0.33}\text{Te-ZnTe}$  多量子阱样品 A 的自发辐射和受激发射谱

Fig. 4 Spontaneous and stimulated emission spectra in  $\text{Zn}_{0.67}\text{Cd}_{0.33}\text{Te-ZnTe}$  multiple quantum wells sample A, at 77 K

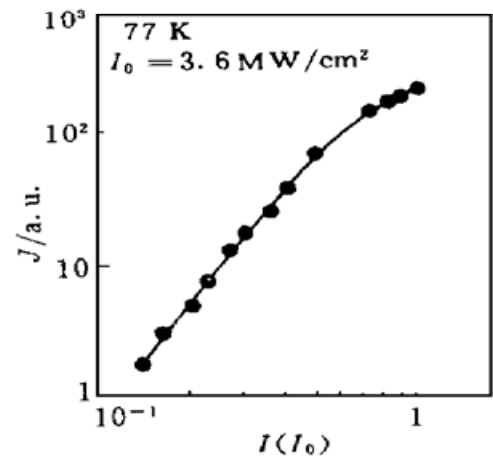


图 5 77 K 下  $\text{Zn}_{0.67}\text{Cd}_{0.33}\text{Te-ZnTe}$  多量子阱样品 A 的受激发射强度随激发光强度的变化

Fig. 5 Stimulated emission intensity in  $\text{Zn}_{0.67}\text{Cd}_{0.33}\text{Te-ZnTe}$  multiple quantum wells as a function of excitation intensity, at 77 K

考虑到受激发射成份的影响,  $n = 2$  的激子峰强度已经超过了  $n = 1$  的激子峰强度, 但  $n = 2$  的激子峰附近仍不能产生受激发射, 受激发射只能产生于  $n = 1$  的激子峰的低能侧。说明  $n = 1$  的激子在样品的受激发射中始终起着重要的作用。样品 B 的两解理面相互平行可自然地形成一 F-P 腔, 因而将样品 B 的解理面对准光谱仪的狭缝做受激发射实验测量可以使受激发射经谐振腔放大后被光谱仪接收, 从而抑制了自发辐射成分。样品 B 的受激发射阈值为  $37 \text{ kW/cm}^2$ , 从图 3 看出即使在激发光强度大于受激发射阈值的 15 倍的情况下仍可从样品的光发射谱中观察到清晰的  $n = 1$  和  $n = 2$  的自发辐射谱轮廓, 所以可以认为样品 B 的受激发射过程就

是  $n = 1$  的重空穴激子参与的一系列过程。但该激子参与的具体过程目前尚不能确定。根据阈值时受激发射峰相对于  $n = 1$  的激子峰位置初步估计, 该受激发射可能是激子-电子散射的激光机理。

图 4 所示, 样品 A 的近带边两个发光谱峰被分别归结为  $n = 1$  的重空穴激子发光(574.4 nm 处)和导带电子-受主的发光<sup>[11]</sup>(598.6 nm 处)。随激发光强度的增加在  $n = 1$  激子峰低能侧附近出现的新发光锐峰为受激发射峰, 并被说明是激子-激子散射的受激发射机理<sup>[11]</sup>。在同结构不同组份的样品 B 中, 在相同的实验条件下却没有发现这种受激发射机理, 这是因为激子在受激发射中的具体过程往往是比较复杂的, 不但与材料的结构有关, 还与材料中的激子局域化情况有关。

实现受激发射需要高的激发强度, 以达到粒子数反转条件, 获得正的光增益。但高的载流子密度又屏蔽了形成激子所必须的库仑吸引而阻碍激子的形成。降低屏蔽效应的一种办法是形成激子的局域态, 使其在三维上限制激子。局域态使激子在空间实现分离, 降低了激子的屏蔽效应, 这将稳定激子以达到较高的粒子数, 实现受激发射必须的粒子数反转。同时三维上限制激子增加了激子的束缚能, 这又使得激子能稳定地存在于较高的温度下。

Majumder 等<sup>[12]</sup>曾通过对  $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$  系统的光增益谱测量得出结论, 认为合金组份涨落尾态中的局域化激子在低温下可产生粒子数反转, 从而形成光增益和受激发射。与自由激子相比, 局域激子的多体效应非常弱, 因而合金中观察到的光增益被认为完全产生于局域态激子的填充和这些态的粒子数反转。由文献[13]可知, 受激发射光增益和激子的非均匀线型函数有直接的关系。所以对于这类材料来说, 激子的局域化是产生激子相关的受激发射的一个重要条件。本实验中两块样品受激发射峰与激子峰的相对位置关系也从一定程度上表明了这一点。另一方面, 激子的局域态密度又会对材料的受激发射产生其它一系列的影响。样品 A 的激子峰是  $n = 1$  局域化激子的发光峰, 样品 B 的低能峰为  $n = 1$  的自由激子发光峰, 所以样品 A 相对样品 B 具有较大的局域态激子密度。从前面讨论已知, 这两块样品的受激发射具有不同的激子发射过程。样品 A 的受激发射阈值为  $400 \text{ kW/cm}^2$ , 样品 B 的受激发射阈值为  $37 \text{ kW/cm}^2$ , 所以样品 A 的受激发射阈值要比样品 B 大得多。激子的局域态一方面是产生受激发射的重要条件, 另一方面又增加了受激发射阈值; 因而要产生较好的受激发射性能必须严格控制这类样品中的局域态激子密度, 使其达到某一适当的量值。由于 II-VI 族材料的极性较强, 使其在现有的技术条件下生长的这种材料中局域态激子密度普遍较高, 甚至可以说, 这类材料中激子局域态是不可避免的, 即使是自由激子发光, 其激子的局域态也能从带尾态等方面表现出来。另一方面, 从两样品的受激发射强度随激发光强度的变化的实验结果来看(如图 2 和图 5 所示), 样品 A 具有较大的饱和激发光强度, 并使受激发射具有较大的可调范围, 但在这方面的差别不太明显。所以提高材料的生长质量, 减少材料中的缺陷仍然是提高这类材料受激发射性能的一项关键技术。

## 5 结 论

通过低温下光泵受激发射实验研究, 说明这类多量子阱中激子的局域态密度对受激发射的激子具体过程将产生直接的影响。从激子局域态在受激发射中的作用方面来说, 激子局域态的存在是产生受激发射的必要条件, 但过高的局域态密度又使受激发射的阈值明显地增加。

## 参 考 文 献

- 1 K. P. O'Connell, D. M. Bagnall, P. J. Wright *et al.*. (Dark Line Defects, Bright Line Lasers). Microscopic studies of single-shot lasing in CdSe quantum wells. *Phys. Stat. Sol. (b)*, 1995, **187**(2): 451~ 456
- 2 F. A. Majumder, C. Klingshirn, R. Westphaling *et al.*. Gain processes in ZnTe epilayers on GaAs. *Phys. Stat. Sol. (b)*, 1994, **186**(2): 591~ 599
- 3 P. R. Newbury, K. Shahzad, D. A. Cammack. Stimulated emission via inelastic exciton-exciton scattering in ZnSe epilayers. *Appl. Phys. Lett.*, 1991, **58**(10): 1065~ 1067
- 4 R. A. Baltrameyunas, A. A. Gladyshechuk, V. P. Gribkovskii *et al.*. Luminescence and lasing of ZnSe single crystals subjected to one- and two-photon excitation. *Sov. J. Quantum Electron.*, 1981, **11**(4): 539~ 541
- 5 I. M. Catalano, A. Cingolani, M. Ferrara *et al.*. Stimulated photoluminescence of ZnSe. *Solid State Commun.*, 1982, **43**(5): 371~ 374
- 6 H. Jeon, J. Ding, A. V. Nurmikko *et al.*. Low threshold pulsed and continuous-wave laser action in optically pumped (Zn, Cd)Se/ZnSe multiple quantum well lasers in the blue-green. *Appl. Phys. Lett.*, 1991, **59**(11): 1293~ 1298
- 7 Y. Yamada, Y. Masumoto, J. T. Mullins *et al.*. Ultraviolet stimulated emission and optical gain spectra in  $\text{Cd}_x\text{Zn}_{1-x}\text{S}$ -ZnS strained-layer superlattices. *Appl. Phys. Lett.*, 1992, **61**(18): 2190~ 2192
- 8 N. T. Pelekanos, J. Ding, M. Hagerott *et al.*. Quasi-two-dimensional excitons in (Zn, Cd)Se/ZnSe quantum wells: Reduced exciton-LO-phonon coupling due to confinement effects. *Phys. Rev. B*, 1992, **45**(11): 6037~ 6042
- 9 J. Ding, H. Jeon, T. Ishihara *et al.*. Excitons gain and laser emission in ZnSe-based quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **69**(11): 1707~ 1710
- 10 Y. Fujii, I. Suemune, Y. Kuroda *et al.*. Lasing properties and lasing mechanism in a ZnSe/ZnSSe multiple quantum well heterostructure. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1992, **31**(Part 2, 6A): L692~ L695
- 11 Z. W. Zheng, X. W. Fan, Z. H. Zheng *et al.*. The stimulated emission of ZnCdTe-ZnTe multiple quantum wells pumped by light. *Chinese J. of Luminescence* (发光学报), 1997, **18**(2): 105~ 109 (in Chinese)
- 12 F. A. Majumder, S. Shevel, V. G. Lyssenko *et al.*. Luminescence and gain spectroscopy of disordered  $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$  under high excitation. *Z. Phys. B-Condensed Matter*, 1987, **66**: 409~ 418
- 13 Y. Yamada, Y. Masumoto, T. Taguchi. Formation of optical gain due to exciton localization in  $\text{Cd}_x\text{Zn}_{1-x}\text{S}$ -ZnS strained-layer quantum wells. *Physica B*, 1993, **191**: 83~ 89

## Study on Emissions from Localized Excitons in $\Gamma$ -Multiple Quantum Wells

Zheng Zewei Shi Hanqing

(The Air Force Institute of Meteorology, Nanjing 211101)

Fan Xiwu Zheng Zhuhong Zhang Jiying

(Changchun Institute of Physics, Chinese Academy of Science, Changchun 130021)

**Abstract** In this paper, the effects of density of localized exciton states on stimulated emission processes have been reported. In our experiments, two samples of  $\text{Zn}_x\text{Cd}_{1-x}\text{Te}$ -ZnTe multiple quantum wells which with different concentration are employed, and the stimulated emissions from the localized states are observed in each of them. The density of localized exciton states in  $\text{Zn}_{0.67}\text{Cd}_{0.33}\text{Te}$ -ZnTe MQWs is much greater than that in  $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Te}$ -ZnTe MQWs. The stimulated emission processes was found to be an exciton-exciton scattering processes, but it was not found in  $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Te}$ -ZnTe MQWs. It seems to be very important for localized exciton to create stimulated emissions, but too high density of localized exciton states will greatly increase the threshold. In a word, the density of localized exciton states may greatly affect the stimulated emissions.

**Key words** multiple quantum wells, localized state, exciton, stimulated emission