

AlGaAs/GaAs 多量子阱结构中受激载流子的飞秒弛豫特性*

林位株 丘志仁 徐文成

(中山大学激光与光谱学研究所, 广州 510275)

提 要

本文介绍采用飞秒饱和吸收测量技术研究 $Al_xGa_{1-x}As/GaAs$ 多量子阱结构中受激载流子的超快弛豫特性。当激发光子能量大于样品势垒层能带隙时, 受激产生于势垒层和势阱层连续态中的载流子分别在 130 和 30 fs 时间内离开受激态, 弛豫至准平衡态。势垒中的载流子被捕至势阱束缚态的情况主要发生于热载流子的冷却和复合过程的皮秒级时间内。

关键词: 飞秒脉冲, 多量子阱。

本文介绍采用飞秒激光脉冲的饱和吸收光谱技术研究 $Al_xGa_{1-x}As/GaAs$ 多量子阱结构中受激载流子的超快弛豫特性, 特别是势垒中受激载流子的初始弛豫过程。实验结果表明, 势垒层中的受激载流子, 和势阱层中的一样, 首先通过各种散射过程, 离开受激态, 弛豫至准平衡态, 然后再通过载流子—光声子相互作用冷却至平衡态; 同时, 载流子亦通过扩散或量子捕获而被捕获至势阱中, 参与其中的冷却和荧光过程。

一、原理和实验

当用一束激光脉冲激发样品时, 受激产生于导带中的电子和价带中的空穴布居会降低样品对探测光的吸收, 产生所谓吸收饱和。随着受激载流子(电子和空穴)布居的衰减, 这种饱和效应便随之而退化, 对探测光的吸收亦随之增加。这样, 通过测量探测光的变化, 便可以测定载流子布居的衰变情况。

由样品介质中光波场运动方程, 在有二阶极化强度的条件下, 用慢变振幅近似方法可以求得探测光强度的变化 ΔI_P 为^[2]

$$\Delta I_P \propto \sum_{ijkl} \int_{-\infty}^{\infty} E_i^*(t) E_j(t) \int_{-\infty}^t E_k^*(t') E_l(t') A_{ijkl}(t-t') dt' dt, \quad (1)$$

式中 $E_{i,j,k,l}(t)$ 为激发与探测之光波场电矢量, $i, j, k, l = x, y$, A_{ijkl} 是介质三阶电极化率对各光波场联合作用 $E_i^* E_j E_k^* E_l$ 的脉冲响应函数。积分表示对每一对光波场分量 $E_k^*(t')$ 和 $E_l(t')$ 所产生的受激态布居和介质的各向异性, 由 t 以前的时刻 t' 至 t 的所有可能叠加, 它反映了介质非线性极化的因果性。引进描述介质对称特性的 Y 参量 Y_{ij} 和 Y_{ijkl} 后^[1,3], A_{ijkl}

收稿日期: 1990年12月13日; 收到修改稿日期: 1991年9月20日

* 本工作得到国家自然科学基金会的资助。

可写为

$$A_{ijkl}(t) = \{Y_{ij}Y_{kl}[1 - \exp(-t/T_0)] + Y_{ijkl} \exp(-t/T_0)\}G(t), \quad (2)$$

式中 T_0 为表征介质光诱导各向异性的取向弛豫时间常数, $G(t)$ 为布居弛豫函数, 一般具有指数衰减形式,

$$G(t) \propto \exp(-t/T_r), \quad (3)$$

式中的 T_r 为布居弛豫时间常数, 它正是实验中待测定的量。

实验上, 我们使探测光和激发光的电矢量方向相平行或相垂直, 即所谓平行偏振和垂直偏振情况。同时, 探测光是由激发光经分束器分出一小部分并经适当延迟(延迟量为 τ)而得, 即 $|E_P(t)| = b|E_I(t-\tau)|$, $b \ll 1$ 。这样, 对于平行偏振情况(偏振方向沿 x 轴方向), 由(1)式并经变元和归一化后得

$$\Delta I_{P//}(\tau) = \gamma_{//}(\tau) + \beta_{//}(\tau), \quad (4)$$

$$\gamma_{//}(\tau) = \int_0^\infty A_{xxxx}(t') dt' \int_{-\infty}^\infty |E_x(t)|^2 |E_x(t-t'+\tau)|^2 dt, \quad (5)$$

$$\beta_{//}(\tau) = \int_0^\infty A_{xxxx}(t') dt' \int_{-\infty}^\infty E_x^*(t+\tau) E_x(t) E_x^*(t-t') E_x(t-t'+\tau) dt. \quad (6)$$

对于垂直偏振情况有

$$\Delta I_{P\perp}(t) = \gamma_{\perp}(\tau) + \beta_{\perp}(\tau), \quad (7)$$

$$\gamma_{\perp}(\tau) = \int_0^\infty A_{xyyx}(t') dt' \int_{-\infty}^\infty |E_x(t)|^2 \cdot |E_y(t-t'+\tau)|^2 dt, \quad (8)$$

$$\beta_{\perp}(\tau) = \int_0^\infty A_{xyyx}(t') dt' \int_{-\infty}^\infty E_x^*(t+\tau) E_y(t) E_y^*(t-t') E_x(t-t'+\tau) dt. \quad (9)$$

上列 $\gamma_{//}(\tau)$ (或 $\gamma_{\perp}(\tau)$) 是介质的脉冲响应函数 $A_{xxxx}(t)$ (或 $A_{xyyx}(t)$) 与光强度自相关函数的卷积, 它提供了受激态布居弛豫的信息; $\beta_{//}(\tau)$ 和 $\beta_{\perp}(\tau)$ 是所谓相干耦合假像, 它们是由于介质的光诱导各向异性而产生的。只当激光脉冲和探测光脉冲相重叠时, 它们才不为零。为了从探测光信号 $\Delta I_{P//}$ 或 $\Delta I_{P\perp}$ 中获得布居弛豫的信息, 必须把相干耦合假像从中除去, 我们将在下节讨论这个问题。

飞秒饱和吸收测量装置如图 1 所示。由对磁脉冲锁模环形染料激光器产生的、中心波长为 630 nm、脉冲全半宽度为 58 fs、平均功率为 16 mW 的飞秒脉冲列经分束器分裂为激发和探测光束, 它们的强度比为 4:1。这两束光分别经可变光学延迟线和固定光学延迟线后, 会聚于样品上。多量子阱样品(MQW)被置于温度可调的低温室中。透过样品的探测光信号由光电管接受。为了减少探测光强度起伏的影响, 探测光在通过样品之前分出一部分作参考光, 它和信号光一起经差分 and 锁相放大后, 进入微计算机控制的实验数据获取和处理系统进行分析处理^[4]。

实验中所用的多量子阱样品由分子束外延方法生长。它由 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ (10 nm) 和 GaAs (6 nm) 交叠 11 层组成。样品的衬底和缓冲层用研磨和化学腐蚀方法除去, 再把样品粘贴于透明的宝石片上。

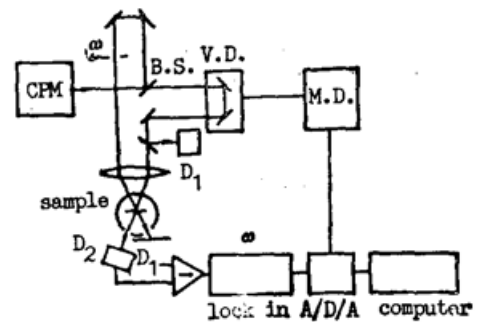


Fig. 1 Schematic diagram of the femtosecond absorption saturation measurement. CPM—colliding pulse mode-locked ring dye laser, B. S.—beam splitter, V. D.—variable optical delay line, M. D.—motor driver, ω —chopper

二、实验结果和讨论

图 2 示出了多量子阱样品在 300K 和垂直偏振时的瞬态饱和吸收曲线。样品中受激载流子的浓度约为 $5 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ 。吸收曲线在 $\tau=0$ 附近呈现一个饱和吸收峰, 随之跟着一个飞秒级和个一皮秒级的退饱和过程, 最后达到纳秒级的平衡状态(图中点划线所示)。图 2 中虚线所示曲线为脉冲光强度自相关曲线。图 2 中横坐标零延迟($\tau=0$)的坐标是如此确定的: 交换激发光束和探测光束的作用, 即把原探测光束用作激发光束, 原激发光束改为探测光束, 获得另一条与图 2 所示曲线镜对称的饱和吸收曲线, 这两条曲线的相交点即为时间延迟零点。因为当激发光脉冲与探测光脉冲完全重合, 即 $\tau=0$ 时, 所产生的饱和吸收值, 对激发光和探测光都应该是一样的。

正如(7)式所指明的, 图 2 所示饱和吸收曲线在 $\tau=0$ 附近包含有真正的信号和相干耦合假像两部分。为了估算耦合假像 $\beta_{\perp}(\tau)$ 的份量, 实验在相同的条件下, 获取了平行偏振时的饱和吸收曲线, 并与垂直偏振时的曲线作比较示于图 3。由图可见, 在 $\tau=0$ 附近, 平行偏振时的幅值比垂直偏振时的大。这正如理论上所预期的, 平行偏振时, 相干耦合具有较大的贡献。

令 $\tau=0$ 时, $\beta_{\parallel}(0)$ 与 $\Delta I_{P_{\parallel}}(0)$ 的比值为 $F_{\parallel}(0)$, 由(4)~(6)式得

$$F_{\parallel}(0) = \beta_{\parallel}(0) / \Delta I_{P_{\parallel}}(0) = 1/2; \quad (10)$$

对垂直偏振情况有:

$$F_{\perp}(0) = \beta_{\perp}(0) / \Delta I_{P_{\perp}}(0) = \frac{1}{B+1}, \quad (11)$$

$$B = \int_0^{\infty} A_{xyyy}(t') dt' \int_{-\infty}^{\infty} |E_x(t)|^2 \cdot |E_y(t-t')|^2 dt / \times \left\{ \int_0^{\infty} A_{xyyx}(t') dt' \int_{-\infty}^{\infty} E_x^*(t) E_y(t) E_y^*(t-t') E_x(t-t') dt \right\}. \quad (12)$$

如果介质的取向弛豫 T_0 和布居弛豫 T_r 均小于光脉冲宽度, 同时, $E_x(t)$ 和 $E_y(t)$ 具有实数高斯型包络, 则有:

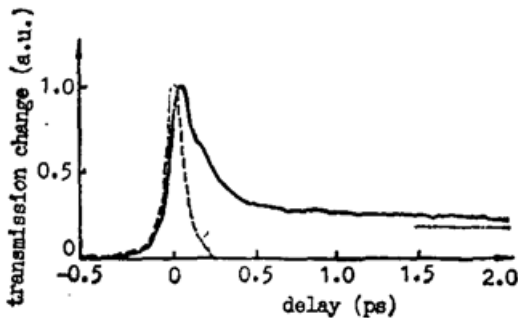


Fig. 2 Femtosecond absorption saturation trace obtained in $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{GaAs}$ MQW at 300K with carrier density of $\sim 5 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$

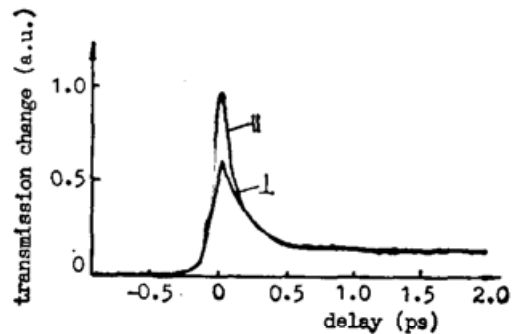


Fig. 3 A comparison of the trace obtained in perpendicular polarization to that in parallel polarization

$$B = \int_0^{\infty} A_{xxvv}(t') dt' / \int_0^{\infty} A_{xyva}(t') dt' = \left[Y_{xx}^2 \frac{T_r}{T_0} + Y_{xxvv} \right] / Y_{xyva}, \quad (13)$$

其中引用了 Y 参量的对称性 $Y_{ii} = Y_{jj}$ 和 $Y_{ij} = 0 (i \neq j)$ 。由(11)式得:

$$F_{\perp}(0) = \frac{T_0}{T_r} Y_{xyva} / \left[\frac{T_0}{T_r} (Y_{xxvv} + Y_{xyva}) + Y_{xx}^2 \right]. \quad (14)$$

由(10)和(14)式可知,在 $\tau=0$ 处,平行偏振时,相干耦合假像的贡献占了探测光信号的一半;而对于垂直偏振情况,相干耦合的影响则依赖于 Y 参量和 T_c/T_r 。为了确定 $F_{\perp}(0)$, 还需要测定 T_0/T_r 。

设在 $\tau=0$ 处,平行偏振时的饱和吸收曲线幅值与垂直偏振时的比值 R 为,可得

$$T_0/T_r = Y_{xx}^2 (2-R) / [R(Y_{xyva} + Y_{xxvv}) - 2Y_{xxxx}]. \quad (15)$$

由图 3 测得 $R=1.86$, 并由(15)和(14)式计得 $F_{\perp}(0) \simeq 0.19$ 。这样,从图 2 所示的原始曲线中减去相应份量的相干耦合项(它近似地等于相应幅值的光强度自相关函数),便得到图 4 所示的曲线。用解卷积方法可以确定该曲线所对应的布居弛豫时间常数。实际上,实验曲线和一条计算曲线(图 4 点线所示)很好地符合。这条计算曲线是脉冲光强度自相关曲线与包含有三个时间常数的指数型响应函数 $G(t)$ 的卷积,

$$G(t) = \sum_i a_i \exp(-t/T_i), \quad (16)$$

式中 $i=1, 2, 3$, $T_1=30$ fs, $T_2=130$ fs, $T_3=2$ ps, 以及 $a_1/a_2/a_3=1/2/0.68$ 。

这三个时间常数反映了多量子阱中势阱层和势垒层中受激载流子的弛豫过程。因为激发光子能量(~ 1.97 eV)大于势垒层的能带隙(~ 1.8 eV),受激载流子既产生于势阱层中,亦产生于势垒层中,它们都对吸收饱和有贡献。同时,受激发产生于导带中的电子和价带中的空穴同样具有吸收饱和效应。但由于电子质量比空穴的小得多,导带和价带的曲率有较大的差别,大部分的能量集中于电子中;其次,导带的态密度比价带的态密度小,导带中的电子对吸收饱和有较大的影响。瞬态饱和吸收曲线主要地反映了导带中能态和带充满的情况。

具有时间常数为 30 fs 的较快的弛豫过程,可以归属于势阱层中处于连续态的受激载流子初始散射过程。这是因为这些载流子具有较高的能量(约为 400 meV),它们通过载流子-载流子散射、谷间散射和载流子-光声子散射,能较快地离开激发态,弛豫至准平衡态。势阱层中受激载流子的这一较快散射过程已有报道^[5],但他们并没有观测到另一个次快的、约 130 fs 的过程。实验条件的主要差异是:他们采用高势垒的 $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{GaAs}$ 多量子阱样品,对激发光的吸收仅发生于势阱层中。对比体材料 $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 中受激载流子的初始散射情况^[6],作者认为时间常数为 130 fs 的过程对应于势垒层中受激载流子的初始散射过程。由于产生于势垒层中的载流子过剩能量较低(约 170 meV),初始散射速率自然较低。这一次快的时间常数和体材料 $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 的测量结果是一致的。这说明,多量子阱势垒层中载流子初始的动力学行为和体材料的是类似的。

图 4 所示曲线中较慢的、时间常数为 2 ps 的成分相应于势阱层和势垒层中处于准平衡

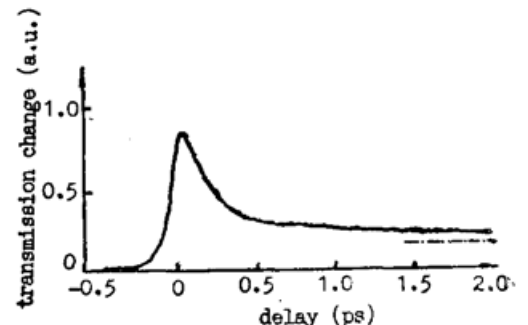


Fig. 4 The coherent coupling artifact has been subtracted from the trace shown in figure 2. The dotted line is the theoretical trace

态的热载流子,通过载流子-光声子相互作用而冷却至与晶格热平衡的过程。图中点划线表征处于势垒层和势阱束缚态的载流子于平衡分布时所产生的饱和吸收效应。这一平衡分布持续几十皮秒以上。动态荧光光谱测量表明,势垒层的载流子在皮秒级时间内被捕获至势阱中;而势阱束缚态中平衡分布载流子的寿命约为几百皮秒。因此,饱和吸收曲线中平衡分布成分来源于势阱束缚态中热平衡载流子的费米分布。若束缚态中载流子的浓度估计为 $\sim 10^{17} \text{cm}^{-3}$,费米能级约在导带底之上 30 meV 处,这一费米分布是有可能为探测光自价带自旋分裂态(SO 态)至导带底的跃迁所探测到而表现出吸收饱和。

为了进一步了解多量子阱中载流子的行为,本实验获取了低温(80K)下多量子阱样品的

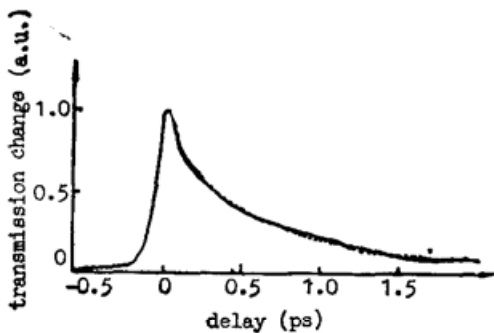


Fig. 5 Femtosecond absorption saturation trace of $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{GaAs}$ MQW at 80K. The dotted line is the theoretical trace

的饱和吸收曲线,如图 5 所示。用上述解卷积的方法,求得这一曲线同样包含有三种成分指数型退饱和过程,其时间常数分别为 35、400 和 1000 fs。各成分的幅值大致相等。其中较快和次快的过程,相应于低温下势阱层和势垒层中受激态载流子的初始散射过程,较慢的成分则相应于热载流子的冷却过程。和室温下的情形相比较,受激载流子的初始散射速率降低了。这是因为在低温下,势阱层和势垒层能带隙都增大了,受激载流子的能量都降低了。特别是势垒层中,受激态已很靠近导带底部,载流子间的屏蔽效应大大地减缓了初始散射速率。同时,由于势阱层能带隙增大,由 SO 价带至束缚态的跃迁已不大可能,因此,尽管势垒层的载流子被捕获至势阱束缚态中形成热平衡分布,它并没有在饱和吸收中显示出来。也就是说,低温时的饱和吸收曲线中无显著的平衡分布成分是载流子被捕获之故。

因此,尽管势垒层的载流子被捕获至势阱束缚态中形成热平衡分布,它并没有在饱和吸收中显示出来。也就是说,低温时的饱和吸收曲线中无显著的平衡分布成分是载流子被捕获之故。

四、结 论

本文采用飞秒脉冲饱和吸收光谱技术研究了 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 多量子阱在 300 K 和 80 K 时的光激发载流子超快弛豫特性。当激发光子能量大于多量子阱势垒层能带隙时,受激产生于势阱和势垒层的载流子各以不同的初始散射速率,在飞秒级时间内离开受激态,弛豫至准平衡态,然后再在皮秒时间内冷却至与晶格平衡的分布。在这期间,势垒层的载流子因扩散或波函数的重叠而被捕获至势阱束缚态中。这一结果对研制高速光电子器件具有参考价值。我们曾预期被捕获至势阱层束缚态的载流子会引起束缚态充满,从而会产生新的饱和吸收特性。但实验上并没有观察到有关的证据。这可能是由于载流子的密度不高以及激发光和探测光都是相同的单一波长之故。进一步的工作,采用高势垒样品和可调频率的激发和探测脉冲光,研究多量子阱中载流子的弛豫和捕获动力学行为,无疑是很必要的。

本文作者感谢莫党同志的建设性讨论。

参 考 文 献

- [1] J. F. Ryan *et al.*; *Surface Sci.*, 1986, **170**, Nos. 1~2 (Apr), 511~519.
[2] B. S. Wherrett *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1983, **QE-19**, No. 4 (Apr), 680~689.
[3] A. J. Taylor *et al.*; *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1985, **2**, No. 4 (Apr), 663~673.
[4] 林位株等;《应用激光》, 1990, **10**, No. 3 (Jun), 114~117.
[5] M. J. Rosker *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **4**, No. 25 (Dec), 1726~1728.
[6] W. Z. Lin *et al.*; *IEEE J. Quantum Electron.*, 1988, **24**, No. 2 (Feb), 267~275.

Femtosecond relaxation of excited carriers in AlGaAs/GaAs multiple quantum wells

LIN WEIZHU, QIU ZHIREN AND XU WENCHENG

(*Institute of Laser and Spectroscopy, Zhongshan University, Guangzhou 510275*)

(Received 13 December; 1990; revised 20 September 1991)

Abstract

Ultrafast carrier relaxation in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ multiple quantum wells is studied using femtosecond absorption saturation measurements with an excited photon energy higher than that of the band gap of the barrier layers. Carriers generated in the well layers and in the barrier layers scatter out of the excited states to a quasi-equilibrium state in 30 and 130 fs, respectively. Carrier capturing from the barriers to the wells occurs mainly during the carrier cooling and recombination in the time scale of picoseconds.

Key words: femtosecond pulses, multiple quantum wells (MQW).