

采用 532 nm 锁模激光研究量子 阱中的带填充效应

钱士雄 李郁芬

(复旦大学物理系, 上海 200433)

彭文基 李庆行 余振新

(中山大学激光光谱研究所, 广州 510275)

提 要

采用 532 nm 锁模脉冲激光和时间分辨测量系统测量了 InGaAs/GaAs 单量子阱在 77 K 时, 不同激发功率下的时间分辨光致发光谱. 结果表明, 在低激发功率时, 阱中的发光峰的位置随时间变化不大. 而在 175 mW 激发时, 发光峰在刚激发时就向短波移动 10 meV 以上, 然后随时间向长波移动. 结果明确显示了存在于阱中的带填充效应.

关键词 量子阱, 光致发光, 带填充效应.

1 引 言

半导体超晶格、量子阱材料是新型的人工微结构材料. 自从 1969 年 Esaki 及 Chu 提出这种新型结构材料以后^[1]. 由于生长制备工艺的极大改进, 目前已经可以从分子束外延 (MBE) 及金属有机物汽相外延 (MOVBE) 法在许多衬底上生长各种类型的具有很好质量的超晶格、量子阱材料, 人们可以利用光致发光 (PL), 光致发光激发谱 (PLE) 调制反射 (PR) 等方法对量子阱中的激子进行了广泛的研究, 测量得到了激子的能量以及能带的排列情况^[2~5].

在光子能量大于能隙的激发光的作用下, 在量子阱材料中会产生光生载流子. 人们利用光学方法可以研究这些光生载流子的产生、复合及俘获等动力学过程^[6~7].

本文利用高重复率的锁模激光脉冲及快速条纹相机系统对 In_xGa_{1-x}As/GaAs 单量子阱材料的光致发光谱进行了研究, 并进行了时间分辨光致发光谱 (TRPL) 的测量.

2 实 验 装 置

实验中所用的样品是 In_xGa_{1-x}As/GaAs 单量子阱材料*, 它生长在 (001) 取向的 GaAs 衬底上, 先长一层 GaAs 缓冲层, 然后是厚度 $d=5$ nm 的 In_xGa_{1-x}As 量子阱层, 最上面是 GaAs 复盖层, 层厚 50 nm. 实验中所用二个单量子阱样品 (标以 A 和 B), A 样品的 $x=0.1$

收稿日期: 1991 年 9 月 10 日

* 由瑞典 Chalmers 工业大学的 Andersson 教授提供.

(即 $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}/\text{GaAs}$), B 样品的 $x=0.2$ (即 $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{GaAs}$).

进行光致发光测量, 所用的激发光源是一台主动锁模的 YAG 激光器的倍频输出, 波长为 532 nm, 重复频率为 82 MHz, 脉冲宽度为 80 ps, 激光输出的平均功率在 10 mW ~ 350 mW 范围内可调. 计及光学系统的损耗, 进入样品内部的激发功率仅为读数的一半.

实验测量装置已于文献[8]中给出, 倍频激光经衰减片, 反射镜等元件后, 聚焦至置于低温液氮容器内的量子阱样品上. 用透镜聚集样品发出的光致发光信号使之成焦至单色仪的入射狭缝, 单色仪的出射狭缝后接有快速条纹相机系统(条纹相机的光谱接收范围是 400 ~ 900 nm). 但由于所用单色仪的限制, 在本实验中只记录了 800 ~ 873 nm 间的积分和时间分辨光致发光谱.

3 结果与分析

因为实验中所用的光栅单色仪的色散较大, 所以条纹相机系统一般只能接收记录波长范围为 34 nm 宽的光谱. 从以前的工作可知^[8,9], 对于样品 A 和 B, 为得到 GaAs 势垒和 InGaAs 势阱层的光致发光谱, 需要进行二次记录.

测得的样品 A 的积分光致发光谱示如图 1 所示. 可以看到 GaAs 势垒层的光致发光峰的峰值处于 832 nm 处, 即 1.49 eV, 而 $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ 层的光致发光峰值在 868 nm, 即 1.43 eV, 它对应于 11 h 激子的光致发光峰, 即由阱中第一个电子子能级上的电子与第一个重空穴子能级上的空穴构成的激子. (可写为 $1e \sim 1hh$).

本文着重报道在激光作用下, 量子阱材料产生较高浓度的光生载流子所引起的带填充效应. 因为实验中所用的激发光波长为 532 nm, 相当于 2.33 eV, 它既高于 InGaAs 阱层的能隙, 也大于 GaAs 势垒层的能隙, 故均可被二层所吸收. 在这个波长处, 吸收系数大约为 $1 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$, 主要的吸收发生在 GaAs 势垒层, 而势阱层的厚度仅为 5 nm, 所产生光生载流子的数目远较势垒层中的为少. 一个锁模脉冲所产生的光生载流子面密度可以由下式估得

$$n = (I_0 / f A \hbar \omega), \quad (1)$$

式中 I_0 为激发光的平均功率, f 为激光重复率, A 为在样品上激光光斑的大小, $\hbar \omega$ 为入射激光的光子能量. 对于 175 mW 的最高平均功率, 聚焦激光光斑的直径为 0.2 mm 时, 单个脉冲所产生的载流子面密度为 $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. 由于所产生的光生载流子处于很薄的表面层中, 所以对应的载流子浓度相当高.

随激发功率变化时, 所测得的积分光致发光谱中峰值位置有相应的变化, 如图 2 所示.

在势垒层中, 当激发功率由 175 mW 降到 5 mW 时, 峰值的位移只有 1 meV 大小, 基本上不随激发功率而变; 而在势阱层中, 情况就很不同, 当激发功率增大时, 光致发光峰的位

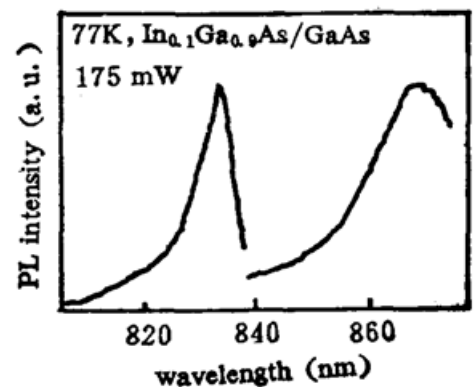


Fig. 1 Integrated PL spectrum of the sample A ($\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}/\text{GaAs}$ SQW) at 77K underpicosecond excitation at 532 nm with power of 175 mW

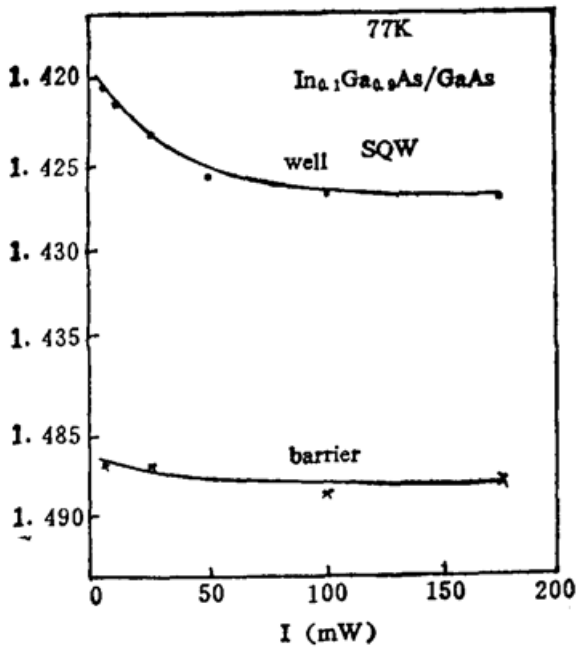


Fig. 2 Integrated PL peak position of the sample A versus the excitation power at 77K

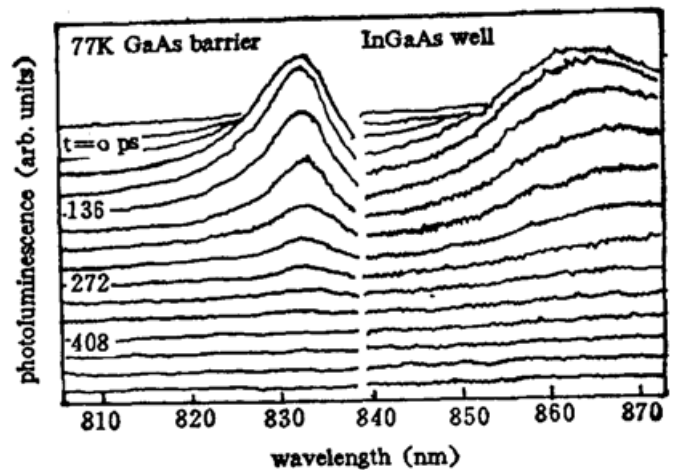


Fig. 3 TRPL spectra of the sample B ($\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{GaAs}$ SQW) at 77K, excitation power is 175 mW. Note that the scales of PL intensity for the well and barrier are different

置明显移向短波, 在 5 mW 功率时, 光致发光峰值近乎移出接收谱的边界 (873 nm), 当激发功率增加至 50 mW 时, 光致发光峰值移至 869 nm. 由这个功率再提高至 175 mW, 移动就不明显.

为进一步探明光致发光峰移动的机理, 实验对光致发光峰的时间分辨谱进行了测量, 其典型的谱图如图 3 所示, (这是在液氮温度下, 175 mW 的激光聚焦在 B 样品上得到的时间分辨光致发光谱, 从图 3 中可以看到, 在激发光作用下, 一开始样品中即有较强的发光, 然后随时间衰减. 势垒层和势阱层的发光衰减情况不同. 一般势垒层的发光衰减得快, 这是因为势垒层中的衰减除了载流子的辐射复合, 无辐射复合之外还有阱层对载流子的俘获^[10], 而势阱层中的发光衰减较慢, 可以得到有关辐射复合, 无辐射复合及俘获寿命的数据.

从图 3 中可以看到, 在高激发状态时光致发光峰随时间的明显变化. 势垒层中的 832 nm 峰移动不大, 在激光刚照射 (取 $t=0$) 时处于 1.490 eV 随时间变化时, 势垒发光峰的小移动处于测量误差范围之内.

而势阱中的光致发光峰随时间移动就大得多, 在 $t=0$ 时, 光致发光峰处于 862 nm (即 1.438 eV), 然后随时间单调向长波移去, 当光致发光峰值强度达到最大时 (t 约为 120 ps), 峰值在 868 nm (1.432 eV) 移动了 6 meV. 之后继续向长波移去, 一直到光致发光峰的强度很弱时, 发光峰几乎移出单色仪的接收范围, 即达 1.42 eV.

实验改变激发光的激发功率, 测量了光致发光峰值随时间变化的时间分辨图, 如图 4 所示. 从图中可以清楚看到, 对 B 样品, 势垒峰在不同的激发功率随时间变化很小, 低功率时, 光致发光峰的略偏短波, 高功率时偏长波 1 meV 左右, 差别在测量精度之内; 而势阱层的光致发光峰随时间变化几乎单调移向长波, 在几个高功率值时, 移动的幅度都在 15 meV 左右. 对于 A 样品, 在很低的激发功率 5 mW 时, 势阱的光致发光峰随时间也没有大的变化, 处在 870 nm 左右, 而当激发功率增大时, 才有明显的移动出现, 即起初光致发光峰出现

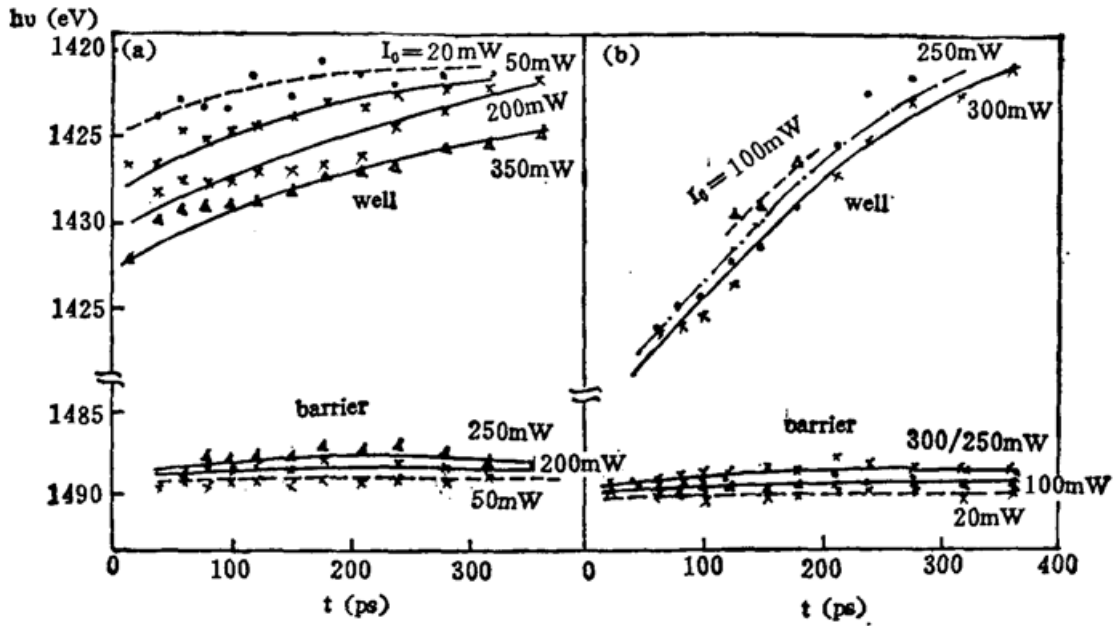


Fig. 4 The dependences of PL peak position on the time delay after excitation of sample a) A and b) B at 77K and different excitation power

在短波边, 随时间慢慢移向长波, 到光致发光强度很弱时, 峰又处于与低功率峰值相近的位置。

从以上的实验结果, 作者认为, 在激发光功率不同时光致发光峰的移动起因于能带中载流子的填充效应。

在低的入射功率时, 载流子密度较低, 由于势阱对载流子有效的俘获作用, 势阱层中的载流子浓度要大于势垒层中的浓度, 这时光生载流子的面密度为 $4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 。测量势垒与势阱层中的光致发光强度之比, 可以估计势阱中的载流子密度为 $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 。从时间分辨光致发光谱结果可以知道, 载流子在阱内分立能级中的填充效应并不十分明显, 激子跃迁的波长基本上是相应于子能级底部之间的跃迁, 因此随时间变化时没有明显的移动。所以作者认为, 这时激子跃迁峰反映了子能级底部(即 $K=0$)激子的复合^[11]。

当激发功率增大, 则由于阱中载流子密度增加到高于 10^{12} cm^{-2} , 这样高的载流子密度, 使得在很薄的阱层中能带填充效应越来越明显, 载流子能带填充效应的直接结果是使得载流子填充于分立子能级的高能量处, 导致激子能量增大, 所以激子复合的光致发光峰明显蓝移。

如果只存在能带填充效应, 那么激子的发光峰的位置应该取决于阱中载流子的浓度, 亦即与阱中发光强度直接相关。但是对比图 5 给出的激子发光峰的位置与发光强度的时间关

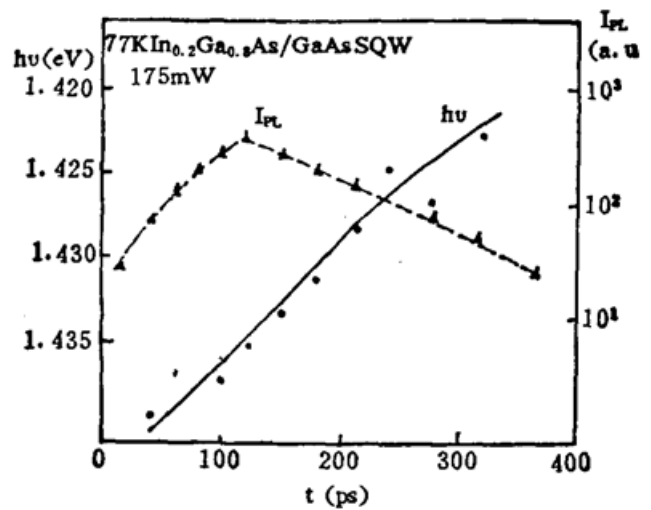


Fig. 5 The comparison of time behaviours of PL intensity and PL peak at 77K and 175 mW excitation power

系,发现情况并非如此,在激光刚激发($t=0$)时,尽管发光强度并不很强,但这时光致发光峰的位置已移到短波边.其原因可能是刚产生的载流子由于具有较大的剩余能量并未弛豫到能级的底部以及强的激光电场造成.当发光强度达到最大后,由于载流子数目的降低,光致发光峰继续向长波移动,一直到光致发光峰可以被检测到时,其位置已经接近于低功率时峰的位置,这表示剩余在阱中的载流子由于弛豫都已处于 $K=0$ 的子能级上.

样品 A 和 B 的时间分辨光致发光谱的结果是基本上相同的,只是样品 B 的势阱的激子峰的蓝移更大.由以前的研究结果可知,样品 A 的激子峰对应于 11 h;而样品 B 由于 In 的含量更大,阱层的势阱更深,激子峰则可能对应于 12 h.因此不同的蓝移量有可能反映了不同的子能级引起的带填充效应的不同.

采用 175 mW 的 532 nm 激光泵浦 GaAs 体材料,测量得到的时间分辨光致发光谱中 GaAs 的光致发光峰的移动和以上单量子阱样品中 GaAs 势垒层的光致发光峰的情况一致,即随时间变化只有 1 meV 左右的移动.这表示在本实验中所用的 175 mW 的 80 ps 脉冲激光作用下,在 GaAs 材料中尚未出现明显的带填充效应,至少是远小于 InGaAs 势阱层中的效应.

4 结 论

利用时间分辨光致发光测量装置,我们观察到 InGaAs/GaAs 单量子阱样品中势垒层和势阱层发光的明显不同的时间特性.在高的激发功率时,由于材料中产生很高的光生载流子密度以及阱层对载流子的有效俘获,使得在薄的势阱层中光致发光峰的位置向高能量处有明显的移动.结果表明,这时起主要作用的是阱中存在的载流子的带填充效应,而其他效应(如能带重整化及温度效应)尚是次要的.纯 GaAs 材料和单量子阱样品中势垒层的时间分辨光致发光谱的相一致,说明了在 GaAs 材料中,带填充效应要比势阱层中小.

参 考 文 献

- [1] L. Esaki, R. Tsu, *IBM Research Note* 1969, RC-2418
- [2] T. G. Andersson, Z. G. Chen, V. D. Kulakovskii *et al.*, Photoluminescence and Photoconductivity Measurements on Band Edge Offsets in Strained MBE-Grown $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ Quantum Well. *Phys. Rev.* 1987, **B37** (8): 4032~4040
- [3] G. C. Osbourn, Strained-Layer Super lattices; A Brief Review. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1986, **22** (9): 1677~1681
- [4] Shu Yuan, Shumin Wang, Shixiong Qian *et al.*, Phototransmission spectra of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ single quantum well. *J. Appl. Phys.*, 1990, **68** (10): 5388~5390
- [5] J. Menendez, A. Pinczuk, Light Scattering Determinations of Band Offsets in Semiconductor Heterostructures. *IEEE J. Quant. Electron.* 1988, **24** (8): 1698~1710
- [6] E. H. Reihien, A. Persson, T. Y. Wang *et al.*, Photoluminescence study of carrier collection and recombination in thin GaInAs/InP single Quantum Well. *J. Appl. Phys.*, 1989, **66** (11): 5554~5563
- [7] J.P. Bergman, Q. X. Zhao, P. O. Holtz *et al.*, *Phys. Rev.* 1991, **B43** (6): 4771~4776
- [8] Qian Shixiong, Yuan Shu, Li Yufen *et al.*, Time-Resolved Photoluminescence from $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ single Quantum Well. *Chinese Phys. Lett.*, 1989, **6** (12): 559~562
- [9] Shixiong Qian, Jianyao Wu, Shu Yuan *et al.*, Power Dependence of the Recombination Processes in the $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ Single Quantum Well. *Chinese Phys. Lett.*, 1991, **8** (8): 428~431
- [10] E. Fortin, B. Y. Hua, A. Charlebois *et al.*, Luminescence, level saturation, and optical gain in a single InGaAs/GaAs Quantum Well. *J. Appl. Phys.*, 1989, **66** (10): 4854~4857

- [11] J. P. Bergman, P. O. Holtz, B. Monemar *et al.*, Decay Measurements of free- and bound-exciton recombination in doped GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells. *Phys. Rev.*, 1991, **B43** (6): 4765~4770

Study of band-filling effect in quantum well with excitation of 532 nm picosecond laser

QIAN SHIXIONG LI YUFEN

(Physics Department, Fudan University, Shanghai 200433)

PENG WENJI LI CHINXIN YU ZHENXIN

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

(Received 10 September 1991)

Abstract

By using a mode-locked picosecond pulse laser at 532nm and a time-resolved detection system, we have measured the time-resolved photoluminescence spectra of In_xGa_{1-x}As/GaAs single quantum well samples at 77K with different excitation powers. At low excitation, the photoluminescence peak of InGaAs well shows small shift with the time. But at 175 mW excitation, there is a great blue shift of the photoluminescence peak at the beginning and shift back to the longer wavelength side with the time. The result clearly shows the band-filling effect of the carriers existing in the well.

Key words quantum well, photoluminescence, band-filling effect.