

文章编号 : 0253-2239(2001)12-1489-04

中远红外傅里叶变换发光测量中 双调制技术的实现与优化*

常 勇¹⁾ 唐文国¹⁾ 程才凤²⁾ 王晓光¹⁾ 褚君浩¹⁾ 汤定元¹⁾

(1), 中国科学院上海技术物理研究所红外物理国家重点实验室, 上海 200083)
(2), 蚌埠飞行学院理论教研室, 蚌埠 233000

摘要: 对常规傅里叶变换发光测量方法进行改进, 引入双调制技术, 在迈克耳孙干涉仪一级调制的基础上, 引入更高频率调制-锁相测量手段。通过这一测量方法的引入, 并通过对调制频率和带通滤波器等测量参数的优化, 基本消除了室温背景的黑体辐射在 $4\ \mu\text{m} \sim 5\ \mu\text{m}$ 以上区域对光致发光测量带来的严重干扰, 在 $10\ \mu\text{m}$ 长波红外波段得到了无室温背景黑体辐射影响的光致发光光谱, 从而将光致发光测量推至 $5\ \mu\text{m}$ 以上长波红外波段。

关键词: 发光; 红外; 傅里叶变换光谱

中图分类号: TN247 文献标识码: A

1 引 言

光致发光 (PL) 技术是一项对材料, 尤其是半导体材料进行无损检测的经典手段。对半导体材料来说, 光致发光测量不但能得到材料带隙、带边电子态、杂质、缺陷、均匀性等方面的信息, 而且还能研究材料的非平衡载流子寿命和辐射复合过程, 从而直接有助于提高那些基于辐射复合机制的器件的性能。80 年代中期以来, 随着计算机技术的发展, 基于迈克耳孙干涉技术的傅里叶变换红外光致发光检测技术逐渐发展起来, 它的多通道优点和高光通量优点^[1] 决定性地弥补了在红外波段使用的固体探测器探测率上的不足和材料本身俄歇过程与肖克莱-雷登 (Shockly-Read) 过程^[2] 等非辐射复合过程的影响, 从而在传统的单色分光测量几乎无法达到的领域作了大量的工作。但是, 在 $4\ \mu\text{m} \sim 5\ \mu\text{m}$ ($2500\ \text{cm}^{-1} \sim 2000\ \text{cm}^{-1}$ 波数) 以上中、长波红外区域, 由于室温背景黑体辐射的影响, 光致发光研究工作开展依然非常困难。很强的室温背景红外黑体辐射信号, 远远强于光致发光信号, 使得无法获得实验测量结果。但是, 恰恰在这一波段, 存在着 $3\ \mu\text{m} \sim 5\ \mu\text{m}$ 和 $8\ \mu\text{m} \sim 14\ \mu\text{m}$ 这两个重要的大气窗口, 红外探测器、水气探测器、二氧化碳红外检测器和热成像设备的研制往往要求器件工作在这一波段, 为此, 发展一种能够

消除背景热辐射的影响、对用于中、长波段红外工作的材料进行无损检测评价的发光光谱测量方法, 要求已十分迫切。

我们在傅里叶变换红外光谱仪的基础上, 建立了红外光致发光光谱测量方法, 在此基础上, 进一步引入双调制技术, 消除了室温黑体辐射对光致发光测量的不利影响, 在 $10\ \mu\text{m}$ 以上室温背景黑体辐射很强的区域, 得到了窄禁带半导体的光致发光光谱。

2 实验原理与设备

图 1 所示为实测 Nicolet 800 傅里叶红外光谱仪对室温背景黑体辐射的响应, 实验使用了 KBr 分束片和光导型 HgCdTe 固体探测器。从 $4\ \mu\text{m} \sim 5\ \mu\text{m}$ ($2500\ \text{cm}^{-1} \sim 2000\ \text{cm}^{-1}$ 波数) 开始, 黑体辐射信号迅

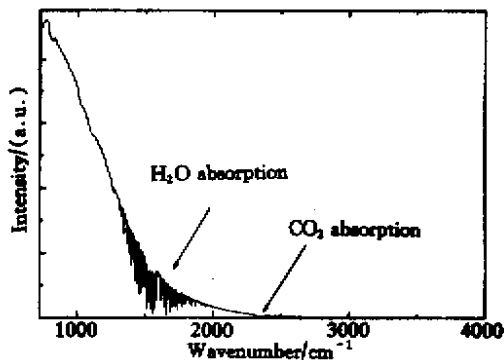


Fig. 1 The signal of background blackbody emission at the room temperature

* 国家自然科学基金 (6187-6042, 6982-3002) 资助课题。

收稿日期: 2000-05-30; 收到修改稿日期: 2000-11-24

速增强,而对于窄禁带半导体,其自身的辐射复合^[2]几率要远低于俄歇复合的几率,再加上窄禁带半导体材料自身往往具有较多的杂质、缺陷,通过这些杂质、缺陷所引入的深中心的肖克莱-雷登复合的几率也很大,这些因素往往导致发光信号要比背景辐射信号弱至少 200 倍以上^[3]。为了消除室温背景黑体辐射的影响,对常规的傅里叶变换红外光致发光实验方法进行了改进,基本思想是在傅里叶变换光谱仪中迈克耳孙干涉仪调制的基础上,对用来激发的激光进行更高频率的调制,探测器探测到的光致发光信号经前置放大后,由锁相放大器解调制再加以放大,然后再送入傅里叶变换光谱仪中进行解傅里叶变换得到光谱,这样,只有和激发光同频率且保持固定相位差的光致发光信号才能被检出和放大,背景黑体辐射信号则被彻底压制掉。

双调制傅里叶变换红外光致发光测量设备的具体组成如图 2 所示。

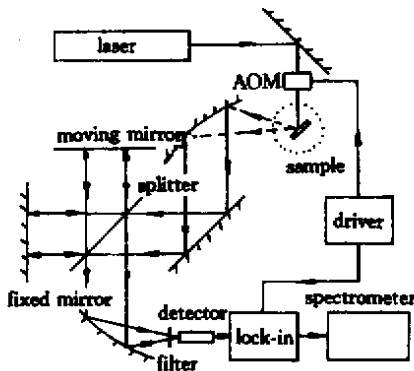


Fig. 2 The Schematic diagram of the double modulated Fourier transform infrared photoluminescence system

Ar⁺ 连续波激光器产生的激发光以布拉格角入射至声光调制器,经声光相互作用,产生随所加信号相应的偏转,取第一级衍射光束作为输出,使光的强度被调制器调制成高频方波输出。然后,用这种被调制的光激发放在致冷器中的样品,得到以相同频率变化的光致发光信号,为了消除光学红外材料的吸收、色散等的影响,发光选用离轴抛物面镜收集,调节成平行光后送入傅里叶变换红外光谱仪,经其中的迈克耳孙干涉仪的调制,为红外探测器所探测。探测器的前置放大器后接高频锁相放大器,声光调制器的调制信号作为参考信号也送入锁相放大器,这样背景黑体辐射信号就被压制掉了。锁相放大器的输出再进行开关增益放大和滤波,最后经 A/D 转换,由计算机进行数据采集,接着进行相位校正、切趾以及傅里叶变换,从而得到消除背景辐射干扰的光致发光光谱。

为了获得高质量的谱图,对激发光进行调制的频率应远大于干涉图中最高频率分量,而且其周期还应该远小于锁相放大器的积分时间常数,而这个积分时间常数又受到光谱仪采样周期的制约,积分时间常数应略小于或等于采样周期以获得尽可能大的信噪比。以前也有人采用过双调制技术,但由于受到机械斩波器的限制,调制频率难以提得很高,大多只能将调制频率比干涉图中的最高频率分量大 10 倍左右,这一方面使得扫描速度不能提高,另一方面也使信噪比降低。提高调制频率,则可以提高信噪比和采样速度,因此,我们选用可以达到较高调制频率的声光调制器,将调制频率提高,从而可以将测量质量进一步加以提高。

在具体实验中还需要注意声光调制器调制频率的选择。从理论上讲,锁相放大器在一定的积分时间常数下,调制频率的提高有利于信噪比的提高,但是,红外探测器的响应时间是有限的,频率的提高反而会使探测率 D 下降,图 3 所示为光导型 HgCdTe 红外探测器和三甘氨酸硫酸酯红外探测器的探测率 D 与频率的依赖关系,可以看到,在这种实验中,三甘氨酸硫酸酯热释电探测器因响应速度太慢而几乎无法使用。一般来说,光伏型 HgCdTe 单元红外探测器的响应速度比光导型又有所提高,可以在更高一些的频率下使用。对装有光导型 HgCdTe 红外探测器的双调制傅里叶变换红外光致发光测量系统而言,实验证明,为了取得较好的信噪比,调制频率不能超过 100 kHz。

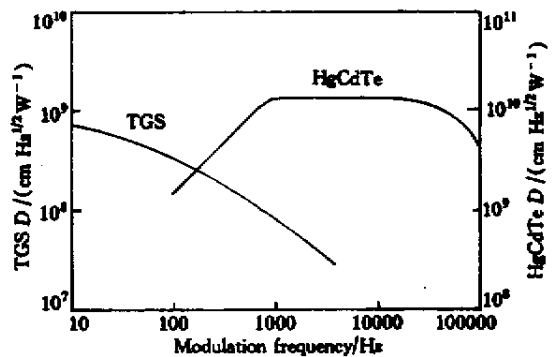


Fig. 3 The detectivity D of the HgCdTe and TGS detector vs. modulation frequency

另外一点需要注意的是带通滤波器截止频率的选择。一束波数为 σ 的单色光,经动镜速度为 v 的迈克耳孙干涉仪调制,被探测器接收到的是一定幅度的频率为 $2\sigma v$ 的交流正弦信号^[4],所以应该在锁相放大器的输出后,选用适当的带通滤波器以提高仪器的信噪比;此外,因为光致发光信号往往很弱,

傅里叶变换光谱设备提供的自动相位校正往往会产生错误,造成光谱的畸变,这时,手动相位校正是必需的^[5]。

3 实验结果与分析

图 4 所示为一经过 Fe 掺杂的 $x = 0.31$ 的 HgCdTe 样品在 4.2 K 下的光致发光光谱,一般傅里叶光致发光测量得到的结果和双调制傅里叶变换红外光致发光测量的结果在图中同时给出,可以看到,通过使用双调制手段,室温背景黑体辐射已经全面被压制了,正是因为利用了双调制手段,消除黑体辐射影响后,才能确认在 Fe 掺杂 HgCdTe 的光致发光光谱中只能看到一个本征的光致发光结构,从而可以直接确定出 Fe 杂质能级的非辐射复合或极弱辐射复合中心的性质,也正是因为引入了调制-锁相手段,即使不包含降低背景噪声对系统测量灵敏度的贡献,也将系统的测量灵敏度提高了一个数量级以上,使得能够测量出光致发光强度随温度的猝灭关系,从而可以准确地确定出 Fe 掺杂引入能级的位置,得到的结果与红外光吸收测量和霍尔效应测量得出的结果完全一致。研究结果在有关文献中已经进行了讨论^[4,6]。

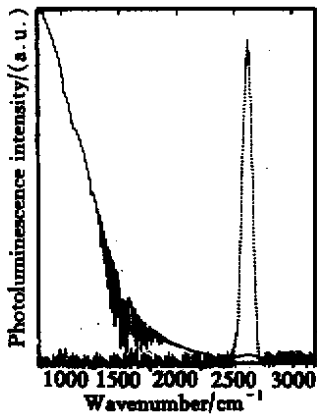


Fig. 4 The Fourier transform photoluminescence spectrum (full line) and its double modulated Fourier transformed infrared spectrum (dashed line) from a Fe-doped HgCdTe sample

图 5 为 $x = 0.21$ HgCdTe 样品在 $10 \mu\text{m}$ 附近通过双调制技术得到的红外光致发光光谱,光谱上约 4 meV 浅施主能级引起的光致发光结构也可以明显地分辨出来^[7],进一步地通过对单一光致发光光谱高低能端的光谱线型进行拟合,还可以得到材料的带尾能量等表征材料晶格完整性的参数^[8],对材料性质进行表征和研究^[9]。但是,如果仅仅采用常规

的傅里叶光致发光手段,光致发光信号势必淹没在图 1 所示的室温背景黑体红外辐射信号中而根本无法检出。

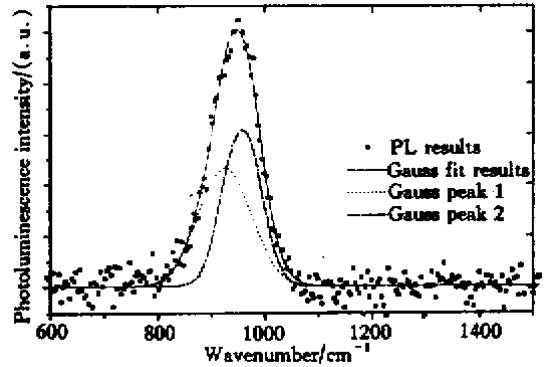


Fig. 5 The double modulated Fourier transform infrared photoluminescence spectrum of the $x = 0.21$ HgCdTe, where the peak 1 and 2 come from the intrinsic carrier recombination and the impurity, respectively

尽管 Fuchs 等提出了另外一种解决室温红外黑体辐射对光致发光影响的相位锁定激发方法,也得到了 $10 \mu\text{m}$ 附近的红外光致发光光谱^[10-12],但是这种方法在开始的理论推导中就假定了光致发光强度正比于激发光的强度^[10],这就使得这种相位锁定激发方法只能用于发光强度正比于光激发强度的某些机制的光致发光研究。Schmidt 等计算了直接带半导体材料的光致发光强度与激发强度的关系^[13,14],可以发现其中大部分机制对应的发光强度与激发功率密度之间的关系偏离线性,这些情况下使用相位锁定激发方法,就会使光谱发生畸变,所得到的发光峰位可能差别不大,但发光线型拟合得到的有关参数则与实际值有较大偏离。

结论 在傅里叶变换发光测量中引入了双调制手段,并且通过对调制频率、带通滤波器的选择、合理进行光谱的相位校正等优化办法,得到了室温背景黑体辐射很强的 $10 \mu\text{m}$ 附近的光致发光光谱。测量结果表明,双调制方法压制了室温背景黑体辐射对光致发光测量的不利影响,可以得到高质量的发光光谱,因而通过光谱分析,可以得到材料的本征与杂质电子态等多方面的信息,从而使光致发光这一古老而有效的材料检测手段,能够顺利地用于红外发光、探测材料的无损评价方面。

参 考 文 献

- [1] 沈学础. 傅里叶变换光谱学·引论和进展. 物理学进展, 1982, (3): 275 ~ 321

- [2] Lopes V C , Syllaios A J , Chen M C . Minority carrier lifetime in mercury cadmium telluride. *Semicond. Sci. Technol.* , 1993 , **8** (65) : 824 ~ 841
- [3] Tomm J W , Herrmann K H , Yunovich A E . Infrared photoluminescence in narrow-gap semiconductors. *Phys. Stat. Sol. (A)* , 1990 , **122** (1) : 11 ~ 42
- [4] 常 勇 , 褚君浩 , 唐文国等 . Fe 掺杂 HgCdTe 材料的光谱与电学研究. *半导体学报* , 1997 , **18** (4) : 258 ~ 262
- [5] Antolini A , Lamberti C . Computing errors in Fourier transform photoluminescence. *Appl. Surface Sci.* , 1991 , **50** (1 ~ 4) : 212 ~ 217
- [6] Chang Y , Chu J H , Tang W G *et al.* . Optical and electrical investigation on Fe impurity behavior in HgCdTe. In : Shen S C , Tang D Y , Zhen G Z *et al.* . *Proc. the Eighth International Conf. on Narrow Gap Semiconductors* . Singapore : World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. , 1998
- [7] 常 勇 , 王晓光 , 唐文国 等 . 窄禁带 $Hg_{0.79}Cd_{0.21}Te$ 的红外光致发光. *红外与毫米波学报* , 2000 , **19** (3) : 174 ~ 176
- [8] Tran T K , Parikh A , Pearson S D . Magnetoluminescence properties of $Hg_{1-x}Cd_x$ Te epitaxial layers and superlattice structures grown by metalorganic molecular beam epitaxy. *J. Electron. Mater.* , 1996 , **25** (8) : 1203 ~ 1208
- [9] 姬荣斌 , 常 勇 , 王善力等 . 分子束外延 HgCdTe 材料的光致发光研究. *光学学报* , 1999 , **19** (9) : 1284 ~ 1288
- [10] Fuchs F , Lusson A , Wagner J *et al.* . Fourier transform infrared photoluminescence. *Proc. SPIE* , 1989 , **1145** : 323
- [11] Fuchs F , Lusson A , Koidle P *et al.* . Fourier transform infrared photoluminescence of $Hg_{1-x}Cd_xTe$. *J. Cryst. Growth* , 1990 , **101** (1 ~ 4) : 722 ~ 726
- [12] Fuchs F , Shmitz J , Obloh H *et al.* . Photoluminescence of InAs/AlSb single quantum wells. *Appl. Phys. Lett.* , 1994 , **64** (13) : 1665 ~ 1667
- [13] Schmidt T , Lischka K , Zulehner W . Excitation-power dependence of the near-band-edge photoluminescence of semiconductors. *Phys. Rev. (B)* , 1992 , **45** (16) : 8089 ~ 8094
- [14] Schmidt T , Daniel G , Lischka K . The excitation power dependence of the near band edge photoluminescence of II - VI semiconductors. *J. Cryst. Growth* , 1992 , **117** (1 ~ 4) : 748 ~ 752

Realization and Improvement of Double Modulation Methods for Fourier Transform Luminescence Measurements in Middle and Far Infrared Band

Chang Yong¹⁾ Tang Wenguo¹⁾ Cheng Caifeng²⁾ Wang Xiaoguang¹⁾
 Chu Junhao¹⁾ Tang Dingyuan¹⁾

(1) , National Laboratory for Infrared Physics , Shanghai Institute of Technical Physics ,
 The Chinese Academy of Sciences , Shanghai 200083
 (2) , Theoretical Teaching and Researching Group , Bengbu Flight Academy , Bengbu 233000)

(Received 30 May 2000 ; revised 24 November 2000)

Abstract : The high frequency double modulation and lock-in technique was attached to the normal Fourier transform infrared spectrometer to eliminate the huge influences of the room temperature background blackbody emission on the measurement of the infrared photoluminescence spectra. The experimental method was optimized by adjusting the modulation frequency , choosing the suitable band-pass filter and phase correction. The photoluminescence spectra in 10 μm long wave infrared band without the influences of the background blackbody emission were obtained.

Key words : luminescence ; infrared ; Fourier transform spectroscopy