

文章编号 : 0253-2239(2001)07-0894-03

非对称耦合量子阱 $Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe$ 的二次谐波产生及其光学各向异性研究*

姜永强 徐建华 王文军 陆兴泽 刘 秀 王恭明

(复旦大学物理系三束材料改性国家重点实验室 , 上海 200433)

摘要 : 采用反射式二次谐波产生方法对非对称 II - VI 族耦合量子阱 $Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe$ 的非线性光学特性进行了研究。与衬底相比 , 非对称量子阱在可见光波段的二次谐波信号增强一个量级以上。测量和比较了室温下量子阱样品与衬底样品的荧光光谱 , 研究了在入射光和反射光均为 p 偏振 , 以及入射光和反射光分别为 s 偏振和 p 偏振两种情况下 , 二次谐波强度随样品旋转方位角的变化关系 , 可见其有非常明显的二阶非线性光学各向异性。

关键词 : 非对称量子阱 ; 二次谐波产生 ; 各向异性

中图分类号 : O431.2 文献标识码 : A

国际上对非对称量子阱材料研究较多的是 GaAlAs/GaAs。在远红外波段 , 由于导带子带内的双共振增强效应 , 其二阶非线性系数将比体材料大 1 ~ 3 个数量级^[1] , 但在近红外/可见光波段 , 由于价带与导带之间的跃迁远离双共振条件 , 虽然可以采用准相位匹配等技术来进行补偿 , 但其二阶非线性系数仍小于体材料^[2]。同时 , 在多数应用中由于有高的背景吸收 , 量子阱材料中激子引起的非线性效应增强难以充分利用等等 , 因此在可见光波段将受到一定的限制。理论分析和实验研究表明^[3,4] , 宽禁带 II - VI 族量子阱材料中的激子由于具有比 III - V 族更大的束缚能和更小的玻尔半径 , 相对更加稳定 , 特别是轻、重空穴激子的共振增强效应 , 使得在没有准相位匹配的情况下 , 能获得比 III - V 族更大的二阶非线性系数 , 有可能在可见光波段具备更广阔的应用前景 , 因而日益受到人们的广泛重视。本文报道了非对称 II - VI 族耦合量子阱 $Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe$ 的二次谐波产生特性及其光学各向异性的研究。

1 实 验

本实验所用量子阱样品是采用分子束外延技术生长的。在 GaAs(100)_n 型基片上 , 首先生长一层 500 nm 厚 ZnSe 缓冲层 , 然后连续生长 10 对非对称

耦合量子阱 , 每对耦合阱之间用 6 nm 厚 ZnSe 隔开。每一对非对称耦合量子阱包含一个 1.2 nm 厚 $Zn_{0.70}Cd_{0.30}Se$ 阱和一个 2.4 nm 厚 $Zn_{0.70}Cd_{0.30}Se$ 阱 , 阱间势垒层为 1.2 nm 厚 ZnSe , 最后再覆盖 60 nm 厚的 ZnSe 覆盖层 , 如图 1 中的插图所示。在相同条件下 , 我们在另一块 GaAs(100)_n 型基片上生长一层 500 nm 厚 ZnSe 作为衬底样品与量子阱样品进行比较。

反射式二次谐波产生的测量装置如图 1 所示。

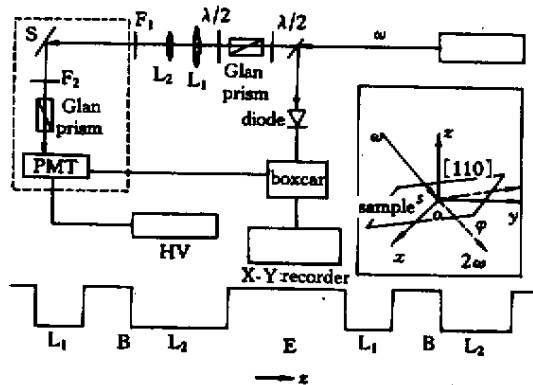


Fig. 1 SHG experimental setup , geometry of SHG measurement and structure of quantum wells. $L_1 = 1.2 \text{ nm } Zn_{0.70}Cd_{0.30}Se$, $B = 1.2 \text{ nm } ZnSe$, $L_2 = 2.4 \text{ nm } Zn_{0.7}Cd_{0.3}Se$, $E = 6.0 \text{ nm } ZnSe$

p 偏振的 $1.064 \mu m$ 的基频光束来自自主、被动锁模 Nd:YAG 激光器 , 脉冲宽度为 35 ps , 脉冲重复频率为 10 Hz , 单脉冲能量约为 1.5 mJ , 一对格兰棱镜和半波片分别用于控制光强和入射光的偏振态。滤光片 F_1 为透红外滤光片 (波长为 820 nm) , F_2 为窄

* 国家自然科学基金和重点基金(19604002 和 19834030) 资助课题。

带 532 nm 干涉滤光片。二次谐波信号用光电倍增管探测后通过 Boxcar 平均积分器输入计算机进行处理。Z-切割石英晶体作为比较基准,以消除由激光功率波动引起的测量误差。样品放在一个可绕其法线方向旋转的转盘上,以改变样品的旋转方位角,固定基频光的入射角为 45°,照射到样品上的光斑直径约为 1 mm。旋转方位角 ϕ 是基片 GaAs [110] 方向与 y 轴的夹角,如图 1 中插图所示。样品的稳态荧光光谱是在日本制造的 F-4500 型荧光光谱仪上测得的,仪器分辨率为 5 nm,激发波长为 400 nm。

2 结果与讨论

2.1 非对称量子阱的荧光光谱

非对称量子阱样品用波长为 400 nm 的激发光激发,再经过透可见光的滤光片,可得到样品在室温下的荧光光谱,如图 2 中实线所示。

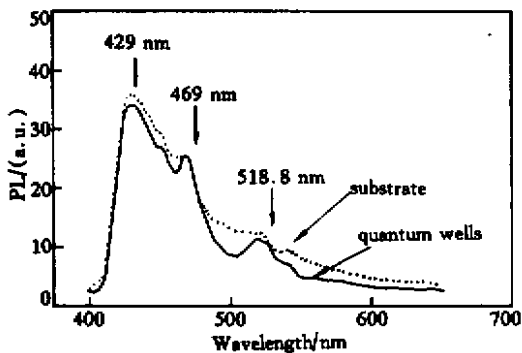


Fig. 2 The photoluminescence spectra of Zn_{0.7}Cd_{0.30}Se quantum wells (solid line) and ZnSe substrate (dash line)

为了辨认量子阱的荧光峰,我们又在同样条件下测量了生长在 GaAs (100) 上 500 nm 厚的 ZnSe 衬底样品的荧光光谱,如图 2 中虚线所示。中心波长处于 429 nm 和 469 nm 的荧光峰是衬底样品的贡献,而 518.8 nm 则是量子阱的荧光峰。量子阱的荧光峰较明显,表明量子阱样品质量较好。与低温下较明显的量子阱荧光峰不同,实验中由于室温下热运动加剧,同时样品中各对非对称量子阱之间的成分及厚度略有波动,从而引起样品荧光峰展宽。

2.2 非对称量子阱的二次谐波及其光学各向异性

ZnSe 晶格结构是闪锌矿 (Zincblende) 结构, CdSe 的稳定结构是纤锌矿 (Wurtzite) 结构。当 Cd 的组分增加时,三元合金 Zn_{1-x}Cd_xSe 会发生结构相变,但当 x 较小时为闪锌矿结构^[5]。理论分析和实验表明,在具有闪锌矿结构的半导体材料中, O_h 和 C_{4v} 分别是体材料和非对称耦合量子阱的点群,导致

不同的二阶非线性光学特性,其二阶非线性极化率张量元如表 1 所示。

Table 1. Symmetry of second order susceptibility in bulk material and quantum wells

symmetry	$\chi^{(2)}$
O_h (Bulk)	0
C_{4v} (AQW)	$\chi_{xx}^{(2)} = \chi_{yy}^{(2)}, \chi_{xz}^{(2)} = \chi_{yz}^{(2)}, \chi_{zx}^{(2)} = \chi_{zy}^{(2)}, \chi_{zz}^{(2)}$

根据量子阱样品的对称性以及入射基频光和出射倍频光的偏振态,可以推导并计算出其有效倍频系数 $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$:入射光和反射光均为 p 偏振时, $\chi_{\text{eff}}^{(2)} = 1 \times 10^{-10}$ m/V;入射光和反射光分别为 s 偏振和 p 偏振时, $\chi_{\text{eff}}^{(2)} = 2 \times 10^{-11}$ m/V^[3]。对于具有中心对称结构的体材料而言,理论上虽然没有二阶非线性信号产生,但由于表面界面效应,仍有一定的二次谐波信号产生。室温下,我们分别测量了量子阱样品和衬底样品的二次谐波信号,由于共振增强效应,得到了比衬底样品大一个数量级以上的二次谐波信号,如图 3 中 b、c 二实线所示。

偶极近似下,非对称量子阱的二次谐波强度 $I_{\text{pp}}^{(2\omega)}$ 和 $I_{\text{sp}}^{(2\omega)}$ 随旋转方位角 ϕ 的变化关系如下^[6,7]:

$$I_{\text{pp}}(\phi) \propto |c_{\text{pp}}^{(0)} + c_{\text{pp}}^{(2)} \cos(2\phi) + c_{\text{pp}}^{(4)} \cos(4\phi)|^2,$$

$$I_{\text{sp}}(\phi) \propto |c_{\text{sp}}^{(0)} + c_{\text{sp}}^{(2)} \cos(2\phi) + c_{\text{sp}}^{(4)} \cos(4\phi)|^2,$$

因子 $c_{\text{pp}}^{(m)}$ 、 $c_{\text{sp}}^{(m)}$ 分别对应于 $E_{\text{pp}}^{(2\omega)}(\phi)$ 、 $E_{\text{sp}}^{(2\omega)}(\phi)$ 的 m 度旋转对称性, $c_{\text{pp}}^{(0)}$ 、 $c_{\text{sp}}^{(0)}$ 表示各向同性的贡献。

我们分别测量了反射二次谐波信号在 pp 和 sp 两种情况下随旋转方位角变化的关系,如图 3 和图 4 中实线所示。

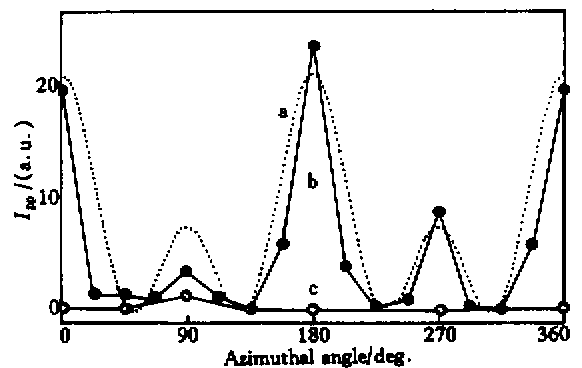


Fig. 3 Dependence of the SHG intensity of Zn_{0.70}Cd_{0.30}Se quantum wells on the azimuthal angle (p-in/p-out) and ZnSe substrate. a: Theory on quantum wells; b: experiment on quantum wells; c: experiment on substrate

从图 3 可以看到,对于入射基频光为 p 偏振、出射倍频光也为 p 偏振时,二次谐波强度随 ϕ 变化而周期性变化,有 $\phi = 0^\circ$ 、 180° 的两个主峰和 $\phi = 90^\circ$ 、

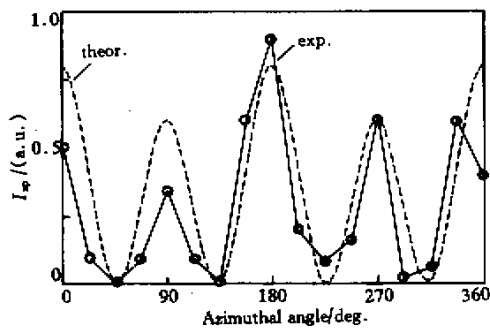


Fig.4 Dependence of the SHG intensity of $Zn_{0.70}Cd_{0.30}Se$ quantum wells on the azimuthal angle (s-in/p-out)

270° 的两个次峰; 其二次谐波相对强度, 主峰大致相等, 次峰也基本一致, 而在 $\phi = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ, 315^\circ$ 时相对强度基本为 0。对于基频入射光为 s 光、倍频出射光为 p 光时 (从图 4 可见), 二次谐波强度也随 ϕ 变化而周期性变化, 有四个峰分别位于 $\phi = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ, 270^\circ$, 其相对强度差别不大, 而在 $\phi = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ, 315^\circ$ 时相对强度基本为 0。

采用文献 [6] 的计算方法, 在偶极近似下, 电四极因子 $c_{pp}^{(4)}, c_{sp}^{(4)} < 10^{-2}$, 略去不计, 拟合后得到 $I-\phi$ 关系, 如图 3 和图 4 中虚线所示。测量结果与理论公式基本符合, 同时我们发现 pp 信号比 sp 信号大一个数量级。二次谐波强度随方位角 ϕ 的变化而周期性变化, 证实非对称量子阱 $Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe$ 的二阶非线性光学性质是各向异性的。

结论 对非对称 II-VI 族耦合量子阱 $Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe$ 在可见光波段的二次谐波产生特性进行了研究。结合室温下样品的荧光光谱特性, 证实量子阱的二次谐波信号要比衬底样品大一个量级以上。二

次谐波强度在入射光和反射光均为 p 偏振, 入射光和反射光分别为 s 偏振和 p 偏振两种状态下随旋转方位角的变化而周期性变化, 证明非对称 II-VI 族量子阱具有明显的光学各向异性。

参 考 文 献

- [1] Rosencher E, Bois P, Nagle J *et al.*. Second harmonic generation by intersub-band transitions in compositionally asymmetrical MQWs. *Electron. Lett.*, 1989, **25**(16): 1063 ~ 1065
- [2] Qu X, Ruda H, Janz S *et al.*. Enhancement of second harmonic generation at 1.06 μm using a quasi-phase-matched AlGaAs/GaAs asymmetric quantum well structure. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **65**(25): 3176 ~ 3178
- [3] Pellegrini V, Parlangei A, Borger M *et al.*. Interband second-harmonic generation in $Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe$ strained quantum wells. *Phys. Rev. (B)*, 1995, **52**(8): 5527 ~ 5530
- [4] Tomassini N, D'Andrea A, Martino G *et al.*. Zr(S,Se)-based superlattices and quantum wells: Band offsets, excitons, linear and nonlinear optical properties. *Phys. Rev. (B)*, 1995, **52**(15): 11113 ~ 11119
- [5] Samarth N, Luo H, Furdyna J *et al.*. Molecular beam epitaxy of $Zn_{1-x}Cd_xSe$ epilayers and $ZnSe/Zn_{1-x}Cd_xSe$ superlattices. *Appl. Phys. Lett.*, 1990, **56**(12): 1163 ~ 1165
- [6] Qu X, Bottomley D, Ruda H *et al.*. Second-harmonic generation from a GaAs/Al $_{1-x}$ Ga $_x$ As asymmetric quantum-well structure. *Phys. Rev. (B)*, 1994, **50**(8): 5703 ~ 5706
- [7] Sipe J, Moss D, Driel H. Phenomenological theory of optical second- and third-harmonic generation from cubic centrosymmetric crystals. *Phys. Rev. (B)*, 1987, **35**(3): 1129 ~ 1141

Second-Harmonic Generation in Asymmetric Coupled $Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe$ Quantum Wells and Its Optical Anisotropy

Jiang Yongqiang Xu Jianhua Wang Wenjun Lu Xingze Liu Xiu Wang Gongming

(State Key Joint Lab for Materials Modification by Laser, Ion and Electron Beams,

Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433)

(Received 29 February 2000; revised 29 May 2000)

Abstract: The nonlinear optical characteristics in asymmetric coupled $Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe$ quantum wells have been investigated by using the reflective second harmonic generation (SHG) measurement technique. The SHG signal from the sample was about ten-fold bigger than that from the ZnSe substrate. The photoluminescence spectra of $Zn_{0.70}Cd_{0.30}Se$ quantum wells and ZnSe substrate were measured. The dependence of the SHG intensity (p-in/p-out, p-in/s-out) in the asymmetric coupled quantum wells on the azimuthal angle were studied respectively, which demonstrated the obvious nonlinear optical anisotropy.

Key words: asymmetric quantum wells; second harmonic generation; optical anisotropy