

ZnCdSe/ZnSe 非对称双量子阱中的光学特性研究*

范希武, 于广友, 张吉英, 杨宝均, 申德振

(中国科学院激发态物理开放研究实验室, 吉林 长春 130021; 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130021)

摘要: 用 LP-MOCVD 技术在 GaAs 衬底上外延生长了 ZnCdSe/ZnSe 非对称双量子阱(ADQW)结构。通过 ps 时间分辨光谱、吸收光谱、发射光谱等的研究得到了如下的结果: 在弱激发下, 观测到 ADQW 结构中的激子隧穿现象; 在强激发下, 在 ADQW 结构中发现了内建电场, 它将影响激子隧穿; 首次观测到由激子隧穿引起的在一定温度范围内宽阱的发光强度随温度上升而增加的现象; 首次观测到该 ADQW 结构中来自宽阱的光泵受激发射。

关键词: ZnCdSe/ZnSe 非对称双量子阱; 激子隧穿; 受激发射

中图分类号: O472 文献标识码: A 文章编号: 1000-7032(2000)04-0293-06

1 引 言

以 ZnSe 为代表的宽带 - 族半导体材料由于大的禁带宽度和大的激子束缚能, 为激子特性的研究和短波长光电器件的研究提供了条件。近年来, 宽带 - 族半导体量子阱研究工作的主要进展在两个方面: 第一, 获得了室温和连续工作的蓝/蓝绿色半导体激光器; 第二, 获得室温和具有 ns 及 ps 量级响应的光双稳器件。在上述研制的器件中, 所用量子阱结构大都是对称结构。非对称双量子阱(ADQW)结构的引入是对对称量子阱结构的一个重要补充, 为深入研究载流子和激子的隧穿提供了新的途径, 也为新型器件设计提供了基础。非对称双量子阱是由一个薄的势垒层耦合二个不同阱宽的势阱层所组成的系统。在宽阱(WW)和窄阱(NW)间载流子的隧穿是非对称双量子阱的主要特征之一^[1, 2], 在宽带 - 族半导体的 ADQW 中, 由于其激子束缚能比 - 族半导体的 ADQW 大得多, 所以载流子的隧穿主要是激子的隧穿^[3]。本文主要报道了用 LP-MOCVD 技术在 GaAs 衬底上生长 ZnCdSe/ZnSe ADQW 结构, 研究了该结构中激子的隧穿以及激子发射, 并对其机理进行了较为深入的分析。

2 实 验

用本实验室自己组装的 LP-MOCVD 设备,

在 Si 掺杂的 (100) GaAs 衬底上, 外延生长了 $Zn_{0.72}Cd_{0.28}Se/ZnSe$ ADQW, 生长温度为 350 °C, 反应器的压力为 1×10^4 Pa。该 ADQW 结构的研制过程如下: 先在 GaAs 衬底上外延生长一层厚约为 1 μ m 的 ZnSe 缓冲层, 然后生长一组 10 个周期的 $Zn_{0.72}Cd_{0.28}Se/ZnSe$ ADQW, 最后再生长一层厚为 60nm 的 ZnSe 复盖层, 其中 ADQW 的每一个周期包括一层窄阱宽 L_n 的 ZnCdSe 阱层 (QW_n), 一层宽为 L_b 的 ZnSe 垒层和一层宽阱宽 L_w 的 ZnCdSe 阱层 (QW_w), 下面我们把这一结构简称为 $L_n/L_b/L_w$, ADQW 的每一个周期被一层厚为 40nm ZnSe 垒层隔开。

3 激子隧穿

3.1 弱激发下的激子隧穿

观测非对称双量子阱中的隧穿现象的一个重要方法就是利用时间分辨发光光谱和发光的衰减进行研究。我们用了皮秒量级的时间分辨光致发光光谱的测试。实验使用的光源是 Ar⁺ 激光器泵浦的 Ti 宝石激光器, 该系统的激光输出波长为 400nm, 重复频率为 80MHz, 功率为 80mW, 激光脉宽为 25ps。时间分辨谱的输出信号用条纹相机来检测。测试时样品放在一个低温恒温器中, 温度可冷却到液氮温度。

图 1 为 10 周期 5nm/5nm/3nm 结构 $Zn_{0.72}$

收稿日期: 2000-06-20; 修订日期: 2000-08-25

基金项目: 国家攀登计划, 国家自然科学基金重大基金(69896260), 国家自然科学基金, 国家 863 高技术项目以及中国科学院激发态物理开放研究实验室的资助

作者简介: 范希武(1936-), 男, 浙江人, 研究员, 博士导师, 主要从事宽禁带 - 族材料及器件光电性能研究。

* 第 10 届全国凝聚态光学性质学术会议(2000.08 海拉尔)邀请报告

Cd_{0.28}Se/ZnSe ADQW 在不同温度下的时间分辨光致发光光谱。从图中可以清楚地看到有两个分别相应于窄阱(高能侧)和宽阱(低能侧)的激子发光峰^[3,4]。这两个发光峰的属性可以被图 2 所示的归一化吸收光谱所证实。吸收谱中窄阱的吸收明显强于宽阱的吸收。这主要是由于窄阱有较大的激子束缚能和相对较强的振子强度。由图 1 所示的时间分辨光致发光光谱中,可以清楚地看到宽阱的激子发光要远强于窄阱的激子发光。考虑到激子从窄阱到宽阱的快速隧穿,这一现象并不奇怪,窄阱中的激子在辐射复合前,大部分已隧穿到宽阱中,并在宽阱中复合,所以窄阱的激子发光要比宽阱弱很多^[3,5,6]。

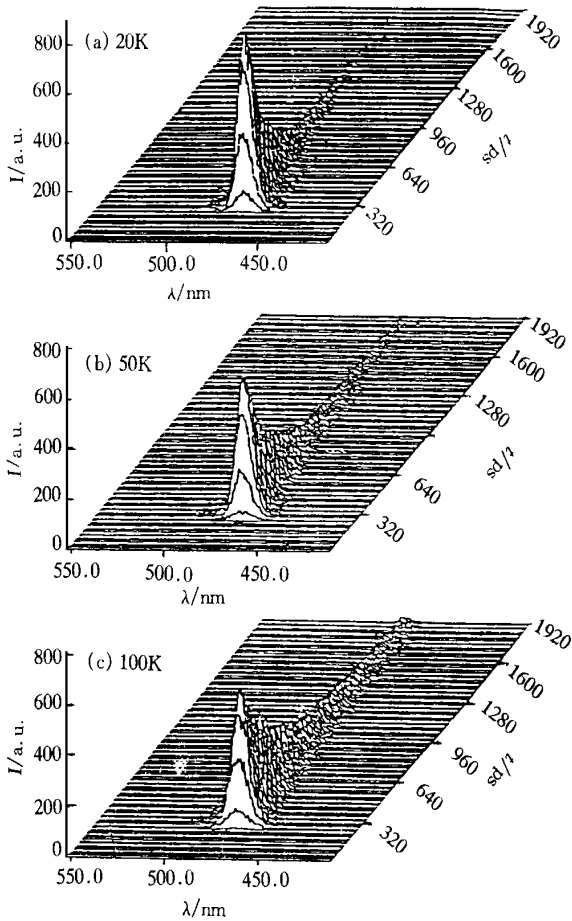


图 1 不同温度下 ZnCdSe/ZnSe ADQW 时间分辨光致发光光谱(a) 20K (b) 50K (c) 100K

Fig. 1 Time-resolved PL spectra of ZnCdSe/ZnSe ADQW at different temperature.

图 3 为 ZnCdSe/ZnSe ADQW 中起源于窄阱和宽阱的激子发光的时间衰减曲线。由图可知,窄阱的发光衰减速度要比宽阱快得多,也就是说,窄阱中的激子寿命要比宽阱中的短。这种激子寿命的差别主要是由于激子从窄阱到宽阱的快速隧

穿引起的。虽然阱宽的不同引起的激子束缚能的差别也能导致激子寿命的变化,但在我们实验样品中,两个阱的阱宽差别不是很大,所以由这种因素引起的激子寿命差是可以被忽略的。因此,两个阱中的激子寿命直接反映了隧穿速度的快慢,寿命差越大,激子的隧穿速度越快。由于温度对激子与声子相互作用有很强影响,所以温度也会影响声子辅助的激子隧穿。我们的实验结果是激子寿命差随温度增加而增加,亦即激子隧穿率随温度增加而增加。

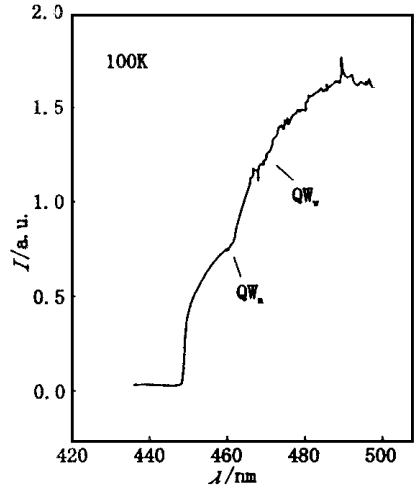


图 2 ZnCdSe/ZnSe ADQW 在 100K 的归一化吸收光谱
Fig. 2 Normal absorption spectrum of ZnCdSe/ZnSe ADQW at 100K.

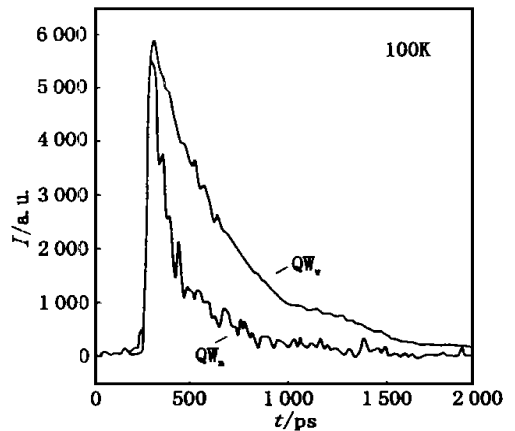


图 3 100K 温度下 ZnCdSe/ZnSe ADQW 窄阱和宽阱激子发光的衰减曲线

Fig. 3 Decay of exciton emission for ZnCdSe/ZnSe ADQW with narrow or broad well at 100K.

3 2 强激发下的激子隧穿

上一节中,我们用 Ti 宝石激光器作为激发光源。由于 Ti 宝石激光器输出的重复频率为 80MHz, 功率为 80mW, 所以可以认为是一种准连

续的弱激发情况。本节我们将研究强激发下的激子隧穿过程, 实验中所用激发光源是 N_2 激光器输出波长为 337.1 nm, 重复频率为 20 Hz, 脉冲宽度为 10 ns。

图 4 为 5 周期 $Zn_{0.8}Cd_{0.2}Se/ZnSe$ ADQW 在 77 K 和不同激发强度下的光致发光光谱。由图可知, 光谱由二个谱带组成, 高能谱带 QW_n 相应于窄阱中的基态激子, 低能谱带 QW_w 相应于宽阱中的基态激子。随着激发光强度的增加, QW_n 出现红移, 而 QW_w 基本不变。图 5 为窄阱和宽阱激子发光的积分强度随激发强度的变化关系。由图可知, 窄阱激子发光随激发强度的变化比较平缓, 而宽阱激子发光随激发强度的变化先是急速上升过程, 然后变得比较缓慢, 显然是一个非线性过程。这一现象在以前有关该结构的研究中未见报道。

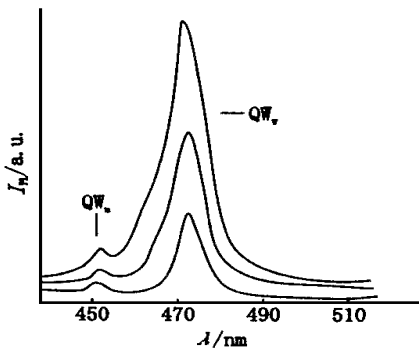


图 4 5 周期 ZnCdSe/ZnSe ADQW 77 K 时不同激发强度下的光致发光光谱 (由上至下激发强度依次为 2.9, 0.9, 0.2 kW/cm²)
Fig. 4 PL spectra of ZnCdSe/ZnSe ADQW with 5 cycles under different excitation intensities at 77 K.

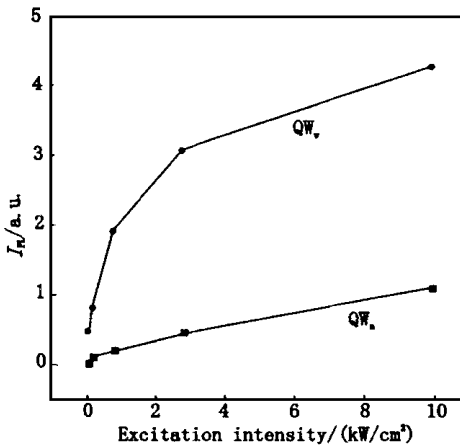


图 5 77 K 时 5 周期 ZnCdSe/ZnSe ADQW 中窄阱和宽阱激子发光强度随激发强度的变化
Fig. 5 Dependence of intensities of exciton emission on excitation intensities for ZnCdSe/ZnSe ADQW with 5 cycles narrow or broad well at 77 K.

随着激发强度的增加, 体系中自由电子、空穴和激子的浓度大量增加, 除存在激子隧穿外, 自由电子、空穴的隧穿也不能被忽视。我们知道, 在 ADQW 的隧穿中, LO 声子辅助过程是一种重要的隧穿方式, 对于自由电子和空穴的隧穿, 这两个过程必须分别独立地通过发射 LO 声子来实现隧穿。通过计算, 我们所用样品窄阱和宽阱的基态电子能级差约为 60 meV, 要大于 ZnSe 势垒中 LO 声子的能量 31.7 meV, 而窄阱和宽阱的基态重空穴能级差约为 9 meV, 远小于 LO 声子能量。这样电子可以通过发射 LO 声子从窄阱隧穿到宽阱, 是一个快过程; 而重空穴则不能通过发射 LO 声子来实现隧穿。另外, 由于重空穴的有效质量比电子大, 因而相对于电子来说, 重空穴隧穿是一个慢过程。这种电子和空穴隧穿速度的差别, 使得窄阱中的电子很快隧穿到宽阱中, 而重空穴则仍留在窄阱中, 导致了电子和空穴在空间上的分离, 从而在相邻的窄阱和宽阱间形成一个内建电场, 电场方向由窄阱指向宽阱。它不同于外加电场, 一般外加电场是穿透整个样品, 而内建电场只存在于每个非对称双量子阱的周期内。随着激发强度的增加, 内建电场增加, 将对自由电子和空穴的隧穿起阻碍作用, 因此使得电子和空穴的隧穿并不随激发强度线性变化, 亦即两个阱中电子和空穴的浓度不随激发强度线性变化, 这样就引起了激子浓度随激发强度的非线性变化, 正如图 5 所示的实验结果。图 4 中窄阱激子发光峰随激发强度增加而产生的红移, 可能是由于内建场增强, 产生 Stark 效应, 导致发光峰红移。根据 Bastard 等人^[7]的计算公式进行了估算, 得到的红移能量与实验结果基本吻合。这种能量移动在宽阱中没有观测到, 可能是由于宽阱的阱宽较大, 而内建场只能影响到界面处的粒子, 所以红移不明显。

4 激子复合

4.1 自发辐射

光致发光光谱测量的激发源是具有输出功率为 30 mW 的连续输出的 Ar^+ 激光器的 457.9 nm 谱线。图 6 为 10 周期 5 nm/3 nm/3 nm 结构的 $Zn_{0.72}Cd_{0.28}Se/ZnSe$ ADQW 在 98 K 时的光致发光光谱。由图可知, 光谱由二个谱带组成, 高能谱带 QW_n 和低能谱带 QW_w 分别相应于窄阱和宽阱中的激子发光。由于隧穿效应, QW_w 要比 QW_n 强得多。图 7 为两个激子发光的积分强度

随温度的变化关系。由图可知,在低温时窄阱的激子发光强度要比宽阱的强,随着温度的增加,窄阱的发光强度像普通量子阱结构一样逐渐减弱。而宽阱的发光呈现一个有趣的现象,先是随温度升高而增强,并可超过窄阱的发光强度,到达某一温度后,才开始出现随温度的升高而下降的过程。这一现象与普通的量子阱结构中所观测到的完全不同。在通常量子阱的情况下,随着温度的增加,激子的离解增加,因而激子发光减小。但在

ADQW 的情况下,由于存在激子的隧穿效应,情况发生了变化。随着温度的增加,一方面激子的隧穿增加可使发光增加,而另一方面激子的离解也增加,则可使发光减小,总的效果取决于二者的竞争。在低温下,即从 10K 到 80K,前者占主导地位,因而发光随温度增加而增加,而在高于 80K 时,后者逐渐占主位,因此发光也就随温度增加而减小。这就解释了图 7 的实验结果。

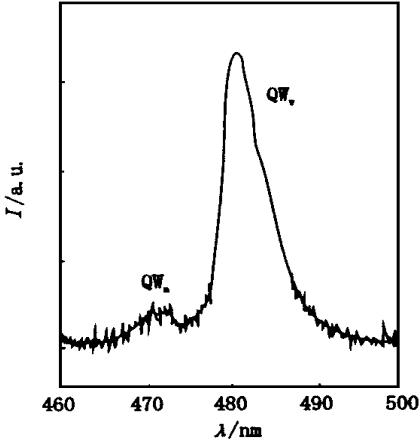


图 6 98K 温度下 10 周期 ZnCdSe/ZnSe ADQW 光致发光光谱

Fig. 6 PL spectrum of ZnCdSe/ZnSe ADQW with 10 cycles at 98K.

4 2 受激发射

测量光致发光和光泵受激发射光谱时的激发源是 N₂ 激光器的 337.1nm 谱线,工作频率为 10Hz,讯号是经 44W 型光栅光谱仪用带有冷却的 RCA-C31034 光电倍增管来接收的。测量时样品的温度可降至 77K。使用 LP-MOCVD 生长的

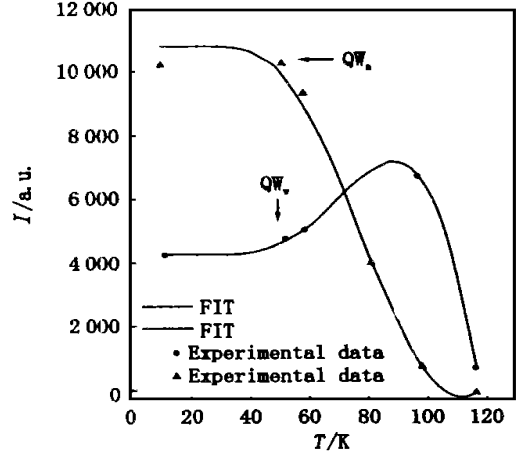


图 7 10 周期(5nm/3nm/3nm)结构 ZnCdSe/ZnSe ADQW 中宽阱与窄阱中的激子发光的积分强度随温度的变化

5nm/3nm/3nm 结构的 ADQW 作为样品。在测量受激发射时,需将样品解理成宽约 1mm 的条状,利用其自然解理面作为 F-P 腔面。

图 8 (a) 为具有 5nm/3nm/3nm 结构的 ADQW 从上表面的面发射光谱。图 8(b) 为该样品解理面的端面发射的光谱。由图可知,每个图

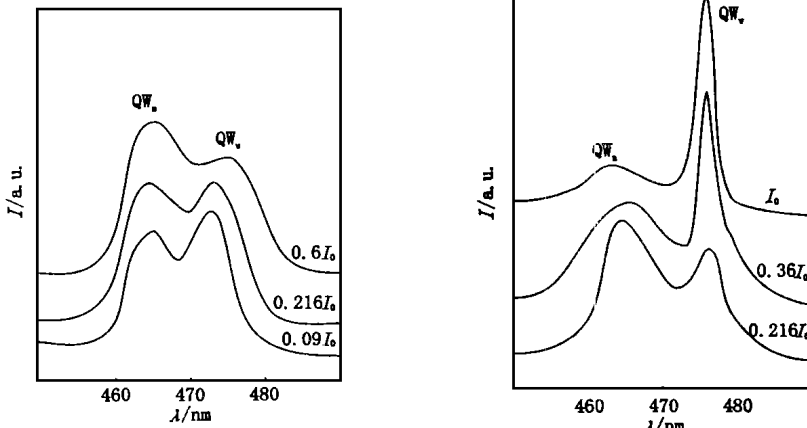


图 8 77K 温度下 10 周期(5nm/3nm/3nm) ZnCdSe/ZnSe ADQW 的发射光谱 (QW_w 宽阱, QW_n 窄阱, I₀= 1MW/cm²)

Fig. 8 Emission spectra of ZnCdSe/ZnSe ADQW with 10 cycles (5nm/3nm/3nm) at 77K.

都有来自不同阱宽的发射谱带,而且随着激发强度的变化,两个谱带有不同的变化。在图 8(a)面发射的情况下,窄阱中的发光强度随激发强度的增加速度比宽阱中快,在较高激发强度下,窄阱的发光在整个光谱中占主导地位。而在图 8(b)端面发射的情况下,宽阱中的发射出现受激发射,其强度要比窄阱中的强很多。

根据上一节的讨论,在强激发下,自由电子和空穴的隧穿不能再被忽视。自由电子和空穴隧穿速率差在非对称双量子阱中将引起一个从窄阱指向宽阱的内建电场,这个内建电场的存在对自由电子和空穴的进一步隧穿起到阻碍作用。另一方面,强激发下,两个阱中的激子密度都很高,从窄阱隧穿到宽阱的激子数量比较大,使得宽阱中的激子密度进一步得到提高,在这种情况下,宽阱中的激子态出现饱和,此时的激子隧穿也将被阻碍。当继续增加激发强度时,两阱中激子密度的变化受激子隧穿的调制已比较小,而在窄阱中由于相

对较大的激子束缚能和相对较强的振子强度使得其发光强度比宽阱要强,这就是我们在图 8(a)上观测上表面发射光谱的现象。在端面发射的情况下,由于 F-P 腔的形成,当激发强度达到一定值时,在腔中将产生增益,在宽阱中将率先出现受激发射,此时,激子复合速率将被改变。

5 结 论

通过对 ZnCdSe/ZnSe ADQW 中发光光谱的研究,得到如下结果:(1)利用 ps 时间分辨光致发光光谱观测到 ADQW 结构中的激子快速隧穿;(2)在强激发条件下,由于自由电子和空穴隧穿的存在,导致空间电荷的分离,在 ADQW 结构中引起了一个内建电场,这个电场会影响激子隧穿,另外,内建电场还引起 Stark 效应;(3)首次观测到由激子隧穿引起的在一定温度范围内宽阱的发光强度随温度的上升而增加的现象;(4)首次观测到该 ADQW 结构中来自宽阱的光泵受激发射。

参 考 文 献:

- [1] Oberli D Y, Shah Jagdeep, Damen T C, *et al.* Optical phonon-assisted tunneling in double quantum well structures [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1990, **56**: 1239-1241.
- [2] Roussignol ph, Vinattieri A, Carraresi L, Colocci M, *et al.* Resonance effects in the carrier-tunneling dynamics in asymmetric coupled quantum wells [J]. *Phys. Rev. B*, 1991, **44**(16): 8873-8879.
- [3] Ten S, Henneberger F, Rabe M, Peyghambarian N. Femtosecond study of exciton tunneling in ZnCdSe/ZnSe asymmetric double quantum wells [J]. *Phys. Rev. B*, 1996, **53**(19): 12637-12640.
- [4] Pelekanos N T, Ding J, Hagerott M, Nurmikko A V, Luo H, Samarth N, Furdyka J K. Quasi-two-dimensional excitons in (Zn, Cd) Se/ZnSe quantum wells: Reduced exciton-LO-phonon coupling due to confinement effects [J]. *Phys. Rev. B*, 1992, **45**(11): 6037-6042.
- [5] Xu S, Jiang D, Li G, Luo J. Carrier nonresonant tunneling in asymmetric coupled double quantum wells [J]. *Superlattice and Microstructure*, 1992, **12**(2): 231-235.
- [6] Ten Krol M F, McGinnis B P, Hayduk M J, Khitrova G, Peyghambarian N. Temperature and carrier-density-dependent electron tunneling kinetics in (Ga, In)As/(Al, In)Al asymmetric double quantum wells [J]. *J. Appl. Phys.*, 1996, **79**(3): 1526-1531.
- [7] Bastard G, Mendez E E, Chang L L, Esaki L. Variational calculations on a quantum wells in an electric field [J]. *Phys. Rev. B*, 1983, **28**(6): 3241-3245.

Optical Characteristics of ZnCdSe/ ZnSe Asymmetric Double Quantum Wells

FAN X W, YU Guang-you, ZHANG Ji-ying, YANG Bao-jun, SHEN De-zhen

(Laboratory of Excited State Processes of Chinese Academy of Sciences,

Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130021, China)

Abstract: The ZnCdSe/ ZnSe asymmetric double quantum wells (ADQW) samples studied were grown on (100) Si-doped GaAs substrates by low pressure (LP) MOCVD. The sample structure consists of a 1 μm ZnSe buffer layer followed by ten periods of Zn_{0.72}Cd_{0.28}Se/ ZnSe ADQW and then a 60nm ZnSe cap layer. Each period of ZnCdSe/ ZnSe ADQW includes one narrow ZnCdSe quantum well, one thin ZnSe barrier and one wide ZnCdSe quantum well. Each period of the ADQW was separated by a 40nm ZnSe barrier.

Exciton tunneling has been studied in the ZnCdSe/ ZnSe ADQW. There are two emission peaks of the time-resolved spectra of the ADQW corresponding to $n=1$ heavy hole recombination from the wide well (WW) and narrow well (NW), respectively. It is obvious that the $n=1$ heavy hole excitonic emission from the WW dominates the spectra, and the $n=1$ heavy hole excitonic emission from the NW decreases and disappears gradually with increasing the delay time. Considering the exciton tunneling in the ADQW, this phenomenon can be explained. Under stronger excitation, the tunneling of free electron and free hole are also observed in the ADQW. Due to different tunneling time of free electron and free hole, space-charge effect was observed in the ADQW, which led to the foundation of the internal electric field. The excitation intensity dependence of the luminescence intensity in the WW and NW as shown in fig. 5 can be explained by foundation of the internal electric field.

The spontaneous and stimulated emission have been studied in the ZnCdSe/ ZnSe ADQW. For spontaneous emission of the ADQW, the exciton recombination both in the NW and WW is influenced by two factors, the exciton tunneling and the thermal dissociation processes. For the NW, the two factors have the same influence on the emission intensity, but for the WW, the influence on the emission intensity of two factors are contrary. The change of the emission intensity in the WW is determined by the stronger one. For stimulated emission of the ADQW, owing to the difference of the energy levels between the WW and the NW, the carriers tunnel from the NW to the WW, which can influence the emission effectively. The carrier tunneling is conducive to lasing from the WW.

Key words: ZnCdSe/ ZnSe ADQW; exciton tunneling; stimulated emission