

非共振激发条件下微腔中激子自发辐射的时间分辨光谱

刘宝利, 徐仲英, 王炳新, 邓元明, 杨富华

(中国科学院半导体研究所 半导体超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

摘要: 低温下, 测量了 InGaAs 量子阱平面微腔的时间分辨光谱。在非共振激发条件下, 观察到上下两支腔极化激元光荧光的衰退时间与失谐无关; 下支腔极化激元光荧光的上升时间也与失谐无关; 而上支腔极化激元光荧光的上升时间却与失谐有强烈的依赖关系, 随着从负失谐到正失谐的增加, 上升时间逐渐减小。对实验结果的物理根源进行了讨论。

关键词: 半导体平面微腔; InGaAs 量子阱; 时间分辨光谱

中图分类号: O472.3

文献标识码: A

文章编号: 1000-7032(2000)04-0299-06

1 引 言

自从 Weishuch 等人^[1]在 1992 年首次在半导体平面微腔中观察到 Rabi 分裂以后, 半导体微腔一直成为人们在理论和实验方面的研究热点。这是由于半导体微腔能限制电磁场的维度, 产生新的物理现象, 使人们可以进行光与物质基本相互作用方面的研究^[2]; 另一方面, 半导体微腔在低阈值垂直腔面发射激光器(VCSEL)、垂直腔发光二极管(VCLED)^[3,4]等器件方面更有着广泛的应用前景。

半导体平面微腔是由包含量子阱的腔体和高反射率的分布布拉格反射器(DBR)作为反射镜而组成的 Fabry-Pot 腔。微腔两端的 DBR 可以在生长方向强烈限制电磁场的模式。产生半宽很窄的单模场。这种单模场与量子阱中的基态激子产生强相互作用, 能够引起激子 Rabi 分裂^[1,5,6]。由于平面微腔的特殊结构, 使其在与生长方向垂直的平面内具有平移对称不变性。具有平面波矢 k_{\parallel} 的激子只能与相同平面波矢的光子产生相互作用^[6,7]。我们一般选定腔模和激子基态在 $k_{\parallel} = 0$ 处的能量相等。在半导体平面微腔中, 激子和光子拥有不同的色散关系, 所以共振条件下, 激子与光子只能在平面波矢 $k_{\parallel} = 0$ 很小的范围内产生强相互作用, 这个区域为强耦合区域, 在光荧光谱中可以观察到两个发光峰; 在其他平面波矢

区域, 激子与光子的相互耦合非常弱, 我们称之为弱耦合区域。在这个区域, 电磁场使激子能量发生变化可以忽略不计, 在光荧光谱上只能观察到一个发光峰。

在强耦合区域, 激子和光子会形成杂化态-腔极化激元。腔极化激元分为上下两支, 并且是激子态与光子态的线性组合: $|p\rangle = c_e|e\rangle + c_c|c\rangle$ 。系数 c_e 即每一支极化激元模式的激子成分可以由 Hopfield 系数^[8]确定: $|c_e|^2 = \omega_R^2 / (\omega_R^2 + (\omega_{i,k} - \omega_{exc,k})^2)$, ω_R 为 Rabi 频率, $\omega_{i,k}$ 是第 i 支腔极化激元平面波矢为 k 时的频率, $\omega_{exc,k}$ 是激子的平面波矢为 k 时的频率。共振时每一支腔极化激元的激子态与光子态的成份相同即 $|c_e|^2 = |c_c|^2 = 1/2$ 。由于 DBR 的反射率为有限值, 腔极化激元可以泄漏出去发出光荧光, 这样我们在半导体微腔中可以通过光荧光直接观察到腔极化激元的发光。在稳态光荧光谱上表现为两个发光峰, 即上下两支腔极化激元发出的荧光。由于半导体平面微腔中电磁场的一维受限特性, 在强耦合条件下, 微腔中激子的动力学过程与无微腔限制的量子阱激子的动力学过程有很大的差异, 具体表现在下支腔极化激元在向强耦合区域弛豫的过程中会受到瓶颈效应的影响, 在时间分辨光谱的测量中有新的物理现象出现。在本文中, 我们通过测量微腔在非共振激发条件下的时间分辨光谱, 发现在强耦合区域, 上下两支腔极化激元的衰

收稿日期: 2000-09-25

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(19774045)

作者简介: 刘宝利(1969-), 男, 吉林四平人, 博士生, 从事半导体光学性质的研究。

E-mail: blliu@red.semi.ac.cn

退时间常数基本相同,而且与失谐无关;在上升时间上,两支表现出来的行为有很大的差异,下支腔极化激元的上升时间与失谐无关,上支腔极化激元的上升时间随着失谐值由负值向正值的增加逐渐减小。

2 实 验

我们在实验中所用的微腔样品由 MBE 生长,正入射条件下的微腔共振波长选择 $\lambda=900\text{nm}$,腔长为 $3\lambda/2$ 。两组 $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ 量子阱放置在微腔内光场最大值处, $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}$ 层的厚度为 11nm 。为了在同一个样品上使激子与腔模的频率具有不同的失谐值,在生长 DBR 时旋转样品,而生长腔体时样品保持不动。

实验测量的光荧光谱和时间分辨光谱是在 12K 的条件下完成的。收集荧光的最大角度约为 5° 。锁模掺钛蓝宝石飞秒激光器用作激发光源。中心波长为 750nm ,脉冲宽度约为 100fs ,重复频率为 82.5MHz 。激光光斑的直径大约 $200\mu\text{m}$,平均激发功率 $\sim 4\text{mW}$ 。样品发出的信号经过 Jobin-Yvon HR250 单色仪,光荧光谱由光子计数器测得,时间分辨光谱是由时间分辨率小于 20ps 的二维条纹相机系统测量的。

3 结果与讨论

光荧光谱是在样品表面不同位置测量的,不同位置的光荧光谱对应 InGaAs 量子阱中激子频率与腔频的不同失谐值。我们定义失谐值 $\delta=\omega_{\text{cav}}-\omega_{\text{exc}}$, ω_{cav} 为腔模频率, ω_{exc} 为激子的频率。不同测量位置即不同失谐值与光荧光谱中峰值能量的关系曲线如图 1 所示,与文献[9]报道的结果类似。我们可以明显观察到在位置 8 处量子阱的激子频率与腔的频率相同发生共振, Rabi 分裂值大约为 5.3meV 。在微腔的生长过程中,我们有意使腔长发生变化,这样在样品表面的不同位置可以得到不同的失谐值。通过图 1 我们确定在每一个测量位置激子与微腔均处于强耦合状态;另外,我们还可以通过这个曲线确定位置 1-位置 7 为负失谐区域,位置 9-位置 16 为正失谐区域。

我们在样品表面测量每一点的光荧光谱的同时测量了时间分辨光谱。图 2 是非共振激发条件下下支极化激元在不同测量位置的荧光衰退曲线。我们观察到各个失谐位置的荧光上升时间和衰退时间完全相同,与激子和腔模的失谐值大小

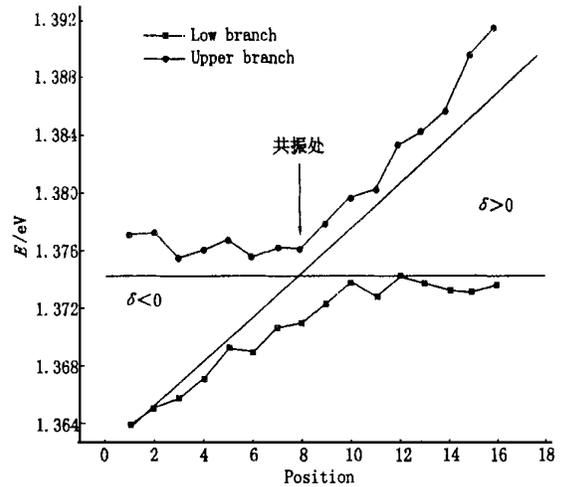


图 1 光荧光峰值能量与样品表面探测位置的函数关系,即与激子-腔模失谐的函数关系;箭头指示出激子-腔模的共振位置

Fig. 1 Peak energies of the photoluminescence signals as a function of the position on the sample, i. e. a function of FP-exciton detuning; the arrow shows the resonant position.

无关,而且以单指数形式进行衰减,衰退时间常数大约为 2300ps 。在这里我们定义上升时间为从光荧光最大值的 20% 到最大值的 80% 所用的时间,测得的时间常数在 $73\sim 54\text{ps}$ 之间变化,如图 2 中的插图所示;考虑到系统的时间分辨率约为 20ps ,上升时间常数可以认为近似相等。图 3 是不同测量位置的上支腔极化激元的荧光衰退曲线。我们发现上支不同位置的衰退时间常数几乎完全相同,并且与下支极化激元荧光的衰退时间常数相同;但其荧光上升时间与下支的明显差异,可以明显看出,随着测量位置的移动,也就是说激子频率与腔模频率从负失谐到正失谐的增加,上支极化激元的上升时间逐渐减小,如图 3 中的插图所示,上升时间的变化范围在 $78\sim 30\text{ps}$ 之间。

下面讨论实验结果。我们知道在微腔中由于分布布拉格反射器的特殊结构,使得在微腔内部光荧光大角度入射时反射率降低,因而微腔中存在大量受微腔限制效应影响很小的模式,具有这样模式的辐射态很容易传播出去被衬底吸收,我们称之为泄漏模(leaky mode)。另外腔极化激元辐射复合发光受到平面动量守恒的限制,只有平面波矢 $k_{\parallel} < n_{\text{cav}}\omega/c$ 的极化激元才能辐射复合发光, n_{cav} 为腔体折射系数, ω 为出射光的频率, c 是真空光速。处于强耦合区域的平面波矢只占整个 $k_{\parallel} < n_{\text{cav}}\omega/c$ 波矢的很小的一部分,大约 10%^[10]。这样大部分可以辐射复合的腔极化激

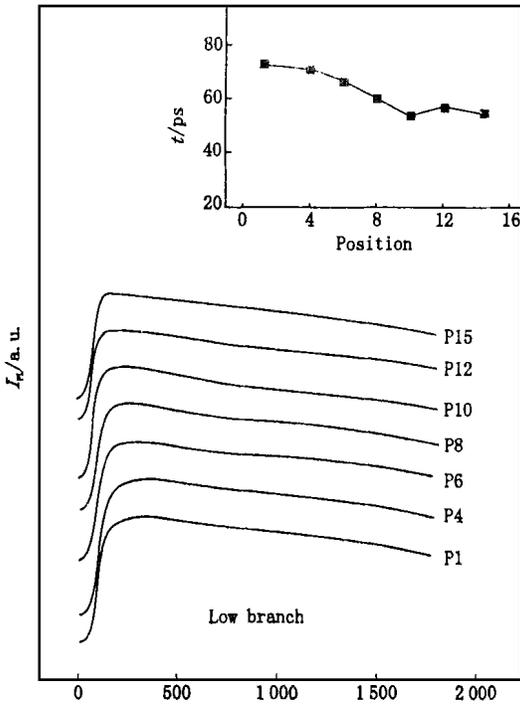


图 2 下支腔极化激元在不同探测位置、峰值能量处光荧光的强度随时间的演化关系; 插图是光荧光的上升时间与样品表面探测位置的函数关系 P_i 代表探测位置 i ;

Fig. 2 Time evolution of the PL intensity of the low-branch polaritons at the peak energy for various positions. Inset shows the rise times as a function of positions. P_i denotes the i th detective position.

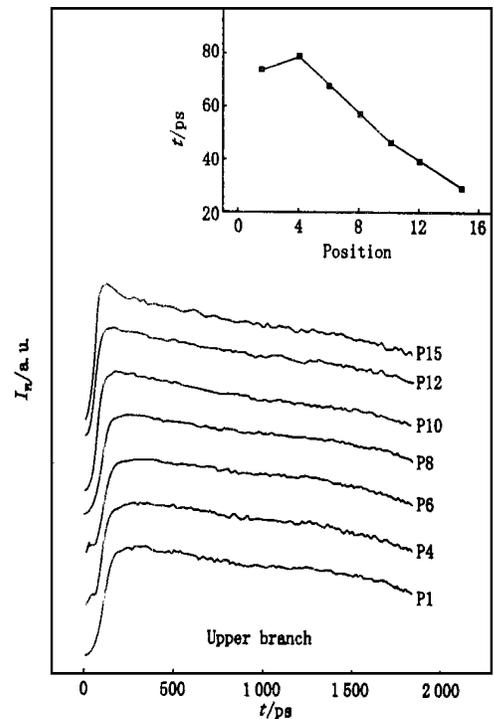


图 3 上支腔极化激元在不同探测位置、峰值能量处光荧光的强度随时间的演化关系; 插图是光荧光的上升时间与样品表面探测位置的函数关系。 P_i 代表探测位置 i ;

Fig. 3 Time evolution of the PL intensity of the upper-branch polaritons at the peak energy for various positions. Inset shows the rise times as a function of positions. P_i denotes the i th detective position.

元处于泄漏模态。一般来说, 量子阱中光激发载流子会迅速失去能量, 随后形成具有大的平面波矢的激子。在光激发载流子形成激子的弛豫过程中, 上支腔极化激元在连续能量带边附近是类光子支, 激子成份很少, 所以形成的激子处于在大的平面波矢、激子成分趋近于 1 的腔极化激元的下支, 而且与失谐的大小无关, 如图 4 所示的每个图中的区域 II。在这个区域, 腔极化激元的有效质量近似为激子有效质量, 约为 $0.25 m_0$, 而在强耦合区域, 腔极化激元的有效质量约为 $3 \times 10^{-5} m_0$, 在这里 m_0 是电子的静止质量^[11], 这样处于强耦合区域的腔极化激元的态密度远小于激子的态密度, 在色散曲线上表现为曲线的弯曲度增大, 即图 4 中的区域 I。具有大的平面波矢的激子通过声学声子散射进一步弛豫到强耦合区域的速率就会降低, 这种弛豫速率的降低又称为瓶颈效应。在收集光荧光信号时, 由于外接收角度最大只有 5° , 那就是说在 k 空间上, 只有 $k_{\parallel} \approx 0$ 附近的腔

极化激元的光荧光能被收集到。大部分处于泄漏模的腔极化激元辐射复合发出的光荧光是没有观测到的。正如上面所述, 平面微腔中泄漏模基本上不受腔限制效应的影响, 而激子从泄漏模弛豫到强耦合区域会受到瓶颈效应的限制, 大部分腔极化激元通过下支的泄漏模辐射复合掉, 所以微腔中整个腔极化激元的衰退速率及整个光荧光的衰退时间唯一由类激子支的动力学过程决定的。根据以上的解释, 我们观察到的强耦合区域上下两支光荧光衰退过程主要由泄漏模的辐射复合速率决定的, 因而这两支腔极化激元的光荧光衰退时间常数基本上是相同的, 而且不依赖于失谐值的大小。

现在讨论上下两支腔极化激元光荧光的上升时间的动力学过程。众所周知, 光激发的载流子会迅速释放能量形成具有大的平面波矢的激子, 这些激子通过声学声子散射冷却到类激子支的底部, 进一步弛豫到强耦合区域会受到瓶颈效应的影响, 这样下支光荧光会受到激子弛豫速率变慢

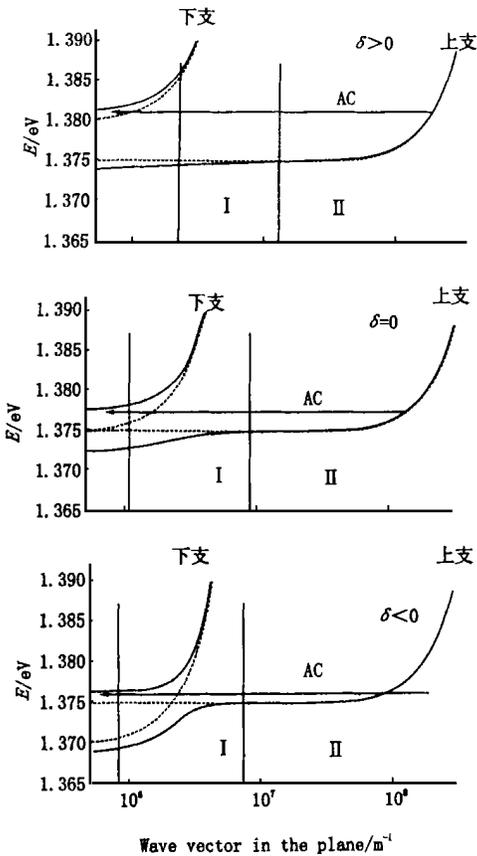


图 4 三种失谐条件下, 上下两支腔极化激元的色散曲线。图中点线为激子和腔模没有发生相互耦合时的色散曲线。区域 I、II 分别为瓶颈区域和具有大的平面波矢激子的热化区域

Fig. 4 Dispersion curves of the upper and the lower cavity polariton modes as a function of the wave vector in the plane for three values of the detuning. The dot lines are the dispersion curves of the cavity without exciton and of the exciton without cavity. The region I and II denote the region of the bottleneck and the region of the high- $k_{||}$ thermalized exciton.

和辐射复合速率增加的双重影响, 理论计算表明^[8,12], 弛豫到 $k_{||} = 0$ 的过程是单声子发射的过程, 而不是多声子级联发射的过程, 因而从下支底部的瓶颈区域散射到强耦合区域的速率是非常小的; 另外, 下支腔极化激元在 $k_{||} = 0$ 处的辐射复合速率远大于散射进来的速率, 即 $k_{||} = 0$ 的腔极化激元被占据的速率, 因而下支腔极化激元在 $k_{||} = 0$ 占据的数目与类激子支底部腔极化激元的数目随时间演化的关系相同, 换句话说, $k_{||} = 0$ 处的光荧光的上升时间与类激子底部腔极化激元占据数的建立时间相同, 因而下支腔极化激元光荧光的上升时间与失谐无关, 我们的实验观测到下支腔极化激元的上升时间不随失谐度的变化而

变化, 与上述的解释一致。上支腔极化激元的动力学过程与下支的不同, 上支的上升时间与失谐有很大关系。我们知道, 占据上支腔极化激元态的动力学过程是下支腔极化激元通过声学声子参与的支间散射过程^[8]; 另外上支腔极化激元由于在更高的能量位置处激子的成份非常小, 所以不可能在电子-空穴连续能级位置上形成, 所以只有与上支底部能量相同的下支腔极化激元中的激子成份才能参与支间的散射过程, 如图 4 所示的 AC (acoustic phonon) 发射过程, 即声学声子参与的散射过程, 而且即使上支腔极化激元在 $k_{||} = 0$ 具有大的辐射复合速率, 这种散射过程仍然会发生; 所以, 上支腔极化激元在 $k_{||} = 0$ 的占据数目与类激子支底部具有相同能量的腔极化激元的数目随时间演化的关系相同。事实上, 随着失谐的增大, $k_{||} = 0$ 的上支腔极化激元的能量也逐渐增大, 而激子弛豫下来到达与此能量相同的下支腔极化激元态的时间比到达下支更低能量位置的更快, 并且随着失谐的增大, 上支腔极化激元的光荧光有更快的上升时间; 另一方面, 随着负失谐的增大, 上支腔极化激元逐渐变成类激子支, 因而光荧光的上升时间逐渐接近下支光荧光的上升时间。上支上升时间的实验结果也支持了上述分析, 即上支的上升时间强烈依赖激子与腔模的失谐值。

4 结 论

我们测量了包含 InGaAs 量子阱的半导体平面微腔在强耦合条件下的时间分辨光谱。非共振激发条件下, 我们观察到下支腔极化激元光荧光的上升时间与衰退时间与失谐无关, 而上支腔极化激元光荧光的上升时间却与失谐有强烈的依赖关系, 随着从负失谐到正失谐的增加, 上升时间逐渐减小。另外, 上支腔极化激元的衰退时间与失谐没有依赖关系, 和下支腔极化激元的衰退时间相同, 这是因为在强耦合条件下, 上下两支的光荧光产生的机制是不同的, 整个腔极化激元的衰退时间主要由泄漏模的动力学过程决定的, 因而两支的衰退时间是相同的。光荧光的上升时间的不同是由于不同的声学声子散射速率造成的, 对于下支腔极化激元而言, 激子通过声学声子的散射存在瓶颈效应, 即从类激子支的底部向强耦合区域弛豫的散射速率降低, 而上支却不受这个效应的影响。

参 考 文 献:

- [1] Weisbuch C, Nishioka M, Ishikawa A, Arakawa Y. Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **69**(23): 3314-3317.
- [2] Zheng Houzhi. Semiconductor microcavity: physics and its applications [J]. *Chin. J. Semicon.*, 1997, **18**(7): 484-491 (in Chinese).
- [3] Yamamoto Y, Slusher R E. Optical processes in microcavity [J]. *Phys. Today*, 1993, **46**(6): 66-73.
- [4] Slusher R E, Weisbuch C. Optical Microcavity in Condensed Matter Systems [J]. *Solid State Commun.*, 1994, **92**(1-2): 149-158.
- [5] Savona V, Piermarocchi C, Quattropani A, *et al.* Microscopic theory of motional narrowing of microcavity polaritons in a disordered potential [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **78**(23): 4470-4473.
- [6] Savona V, Weisbuch C. Theory of time-resolved light emission from polaritons in a semiconductor microcavity under resonant excitation [J]. *Phys. Rev. B*, 1996, **54**(15): 10835-10840.
- [7] Houder R, Stanley R P, Hegems. Vacuum-field Rabi splitting in the presence of inhomogeneous broadening: Resolution of a homogeneous linewidth in an inhomogeneously broadened system [J]. *Phys. Rev. A*, 1996, **54**(4): 2711-2715.
- [8] Tassone F, Piermarocchi C, Savona V, *et al.* Bottleneck effects in the relaxation and photoluminescence of microcavity polaritons [J]. *Phys. Rev. B*, 1997, **56**(12): 7554-7563.
- [9] Sermage B, Long S, Abram I, *et al.* Time-resolved spontaneous emission of excitons in a microcavity: Behavior of the individual exciton-photon mixed states [J]. *Phys. Rev. B*, 1996, **53**(24): 16516-16523.
- [10] Bloch J, Marzin J Y. Photoluminescence dynamics of cavity polaritons under resonant excitation in the picosecond range [J]. *Phys. Rev. B*, 1997, **56**(4): 2103-2108.
- [11] Eman Ismail M, Astratov V N, *et al.* Asymmetric photoluminescence spectra from excitons in a coupled microcavity [J]. *Phys. Rev. B*, 2000, **62**(3): 1552-1555.
- [12] Tassone F, Piermarocchi C, Savona V, *et al.* Photoluminescence decay times in strong-coupling semiconductor microcavity [J]. *Phys. Rev. B*, 1996, **53**(12): R7642-R7645.

Time-Resolved Spontaneous Emission of Excitons in a Microcavity under Nonresonant Excitation

LIU Bao-li, XU Zhong-ying, WANG Bing-xin, DENG Yuan-ming, YANG Fu-hua

(National Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,

Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract: Low-temperature time-resolved luminescence experiments have been performed on a semiconductor planar microcavity which contains two $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ quantum-wells (QWs) embedded in a two-third-wave cavity. The exciton-photon mixing was observed in the structure. The spontaneous emission dynamics of the each of the two components were studied as a function of the exciton-cavity detuning under nonresonant optical excitation. In the strong-coupling regime, the decay times of the low and the upper branch cavity polaritons are almost independent of the cavity detuning. Considering the special structure of a planar microcavity, the polariton states with k_{\parallel} in the strong-coupling region hold only a small fraction of the radiative states (roughly 10%). Most of the radiative states are within the leaky modes of the distributed Bragg reflectors. The photoluminescence decay times of the upper and low branch polaritons are uniquely determined by the radiative states within the leaky modes. Therefore, the decay time is independent of detuning. However, we observed that the rise times of the low and the upper polaritons are obviously different. The rise time of the low branch is independent of the detuning and that of the upper branch is a marked dependence on the detuning. Due to the bottleneck effect and the faster radiative rate of the low branch at $k_{\parallel} = 0$, the rise time of the PL of the low branch at $k_{\parallel} = 0$ is only determined by the population buildup time

at the bottom of the excitonlike branch. Hence it is detuning independent. With respect to the rise time of the upper branch, the population of the upper branch mainly comes from the excitons of the low branch with the same energy. In particular, the energy of the upper branch polaritons with $k_{\parallel} = 0$ for larger positive detunings is much higher than that of the bottleneck region and cooling excitons can easily reach these states well before reaching the bottom of the excitonlike branch. Consequently, the PL rise time of the upper branch becomes faster. On the opposite side of the detunings, the upper branch becomes excitonlike, the PL rise time approaches the value of the low branch. Thus, the rise time of the upper branch depends significantly on the detuning.

Key words semiconductor planar microcavity; InGaAs quantum well; time resolved PL spectra

Received 25 September 2000

第二届徐叙瑗发光学 优秀青年学术论文评定的通知

根据中国物理学会发光分科学会第七届常务理事会第一次会议的决定, 2001 年 9 月在第九届全国发光学学会学术会议期间, 将进行第二届徐叙瑗发光学优秀青年论文的评定工作。凡 1965 年 5 月 31 日以后出生的 35 岁以下, 从事发光学及相关专业工作的各大学、研究所的教学、科研工作人员以及相关企业中的工程技术人员均可申报。具体条件为:

1. 拥护党的改革开放政策, 为知识创新工程、教学、科研努力工作并作出成绩。
2. 申请人需提供自 1998 年以来在国内外科技刊物上发表的学术论文 3~ 5 篇(或在国内外学术会上的邀请报告)。申请人必须是论文的第一作者。
3. 学术论文所涉及的专业方向是凝聚态物质的激发态过程; 凝聚态物质的光学性质; 发光学及其应用等方向。
4. 申请人需有论文投至 2001 年 9 月在北京召开的第九届全国发光学学术会议, 并能亲自到会宣读论文。
5. 申请人申报时需有申请人所在单位(或导师)的推荐函, 并附本人简历及身份证的复印件。

第二届徐叙瑗发光学优秀青年论文的评定设一等奖 1 人, 二等奖 1 人, 三等奖 2 人。发光学会将聘请国内知名学术专家 5~ 7 人组成评定小组, 采取邮寄通信方式对申请人的论文分别进行评定。并在第九届全国发光学术会议期间, 对各位专家的评定结果进行综合。最后由常务理事会进行讨论确定优秀论文作者人选。

申请人提供的论文, 需每篇一式三份, 务于 2001 年 5 月 31 日前寄至中国物理学会发光分科学会秘书处。通讯地址为:

长春市延安大路 1 号 邮编 130021
发光学会秘书处 刘洪楷 (收)

中国物理学会发光分科学会
2000 年 12 月