

ZnCdSe/ZnSe 单量子阱中的 的双激子发光谱*

魏彦锋 黄大鸣 王兴军 俞根才 诸长生 王 迅

(复旦大学应用表面物理国家重点实验室 上海 200433)

摘要 在分子束外延生长的 ZnCdSe/ZnSe 单量子阱结构中, 观察到了双激子发光谱. 采用不同宽度的量子阱, 得出了双激子束缚能与量子阱宽度的依赖关系. 研究了双激子发光谱与激发光波长和激发功率的关系. 发现在阱内激发的条件下, 自由激子更容易由于相互作用而形成双激子, 在 $\sim 1\text{mW}/\text{cm}^2$ 的激发功率密度下即可观察到明显的双激子发光.

PACC: 7855, 7135, 7865

在半导体量子阱中, 由于量子限制效应而增强了激子之间的相互作用, 两个激子可形成一种束缚态——双激子. 自从双激子第一次在 GaAs/AlGaAs 量子阱中被观察到后^[1], 已经有许多的理论和实验工作对双激子的特性进行了研究^[2~7]. 在 II-VI 族宽禁带半导体体系中, 已经在体材料、量子阱和量子点中都观察到了双激子的发光峰^[3,6,7]. 这主要是由于 II-VI 族半导体材料有较大的激子束缚能, 加上量子限制作用, 使双激子效应更为明显. 在以往的文献中报道的双激子发光都是在较高的激发光功率密度下观测到的. 最近, Kuang 等人在一个 6 个单原子层的 ZnCdSe/ZnSe 量子阱中, 用 $\sim 1\text{W}/\text{cm}^2$ 的光功率密度激发, 观察到了双激子发光^[8]. 在这些报道的实验中所用的激发光子能量都大于势垒的禁带宽度.

本文报道用分子束外延生长的 ZnCdSe/ZnSe 单量子阱的低温光致发光谱, 发现当激发光能量低于势垒的禁带宽度, 即在阱内激发的条件下, 只需 $\sim 1\text{mW}/\text{cm}^2$ 的激发强度就可以观察到双激子发光, 这一强度比文献中报道的激发光强度低三个数量级. 本文同时给出了双激子发光强度与激发强度的超线性关系, 并测量出了双激子的束缚能与阱宽的关系.

本实验所用的样品 A 和 B 是用 MBE 方法生长在 n 型 (100) 取向的 GaAs 衬底上. 生长时的腔体真空度为 $2.66 \times 10^{-6}\text{Pa}$, 生长温度为 300°C , 生长速率为 1.25nm/s . 样品 A 包括以下的结构: 一层 75nm 的 ZnSe 缓冲层, 一个 3.8nm 的 $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Se}$ 量子阱, 一个 10nm 的 ZnSe 势垒, 一个 10nm 的 $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Se}$ 量子阱, 一层 75nm 的 ZnSe 覆盖层. 样品 B 的结构为: 一层 60nm 的 ZnSe 缓冲层, 一个 2.5nm 的 $\text{Zn}_{0.78}\text{Cd}_{0.22}\text{Se}$ 量子阱, 一个 19nm 的 ZnSe 势

* 本文工作得到国家自然科学基金的资助

魏彦锋 1971 年出生, 博士研究生, 从事半导体材料生长和光学性质研究

黄大鸣 1957 年出生, 教授, 从事半导体物理和器件物理研究

1998-10-10 收到, 1998-11-28 定稿

垒, 一个 5.0nm 的 $Zn_{0.78}Cd_{0.22}Se$ 量子阱, 一个 19nm 的 ZnSe 势垒, 一个 10nm 的 $Zn_{0.78}Cd_{0.22}Se$ 量子阱, 一层 19nm 的 ZnSe 覆盖层 在相同的生长条件下我们也生长了一片 ZnCdSe 薄膜样品, 通过测量其低温下的光致发光谱来确定 Cd 的含量 光致发光谱以 Ar^+ 激光器的 457.9nm 线和 He-Cd 激光器的 325.0nm 线作为激发源, 测量时样品放入低温槽中冷却到 10K, 信号经 Jobin-Yvon 双光栅单色仪分光后由光电倍增管收集

图 1 是样品 A 在 457.9nm 激光激发下的发光谱 其中 a, b, c 三条谱线的激发功率密度分别为 0.006, 0.89, 18W/cm² 谱线中出现了三个主要的峰: 能量为 2.5437eV 的峰与宽阱中的复合过程有关; 来自窄阱的有两个发光峰, XX 和 X , 其能量分别为 2.5877eV 和 2.5975 eV.

图 2 是样品 B 在 457.9nm 激光激发下的发光谱 其中 a, b, c, d, e 五条谱线对应的激发功率密度分别为 0.0006, 0.022, 4.1, 32, 110W/cm² 图 2 中的每条谱线都出现三组峰, 这三组峰分别对应于三个不同宽度量子阱中的激子发光, 每组峰包括一个低能峰 XX 和一个高能峰 X .

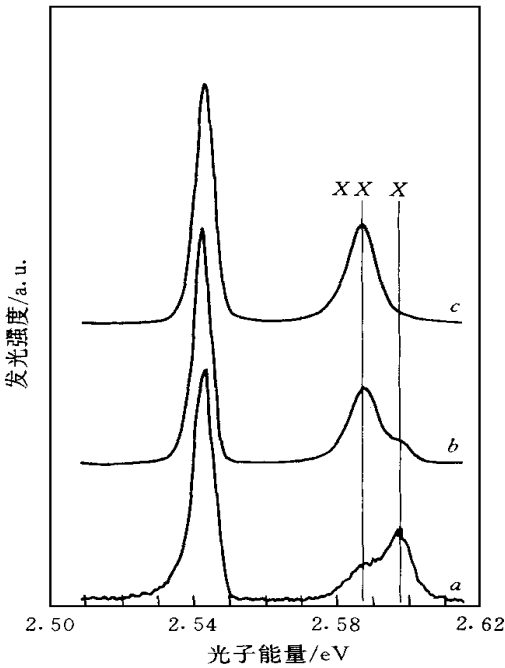


图 1 样品 A 的低温光致发光谱
激发光为 Ar^+ 激光器的 457.9nm (2.707eV) 线

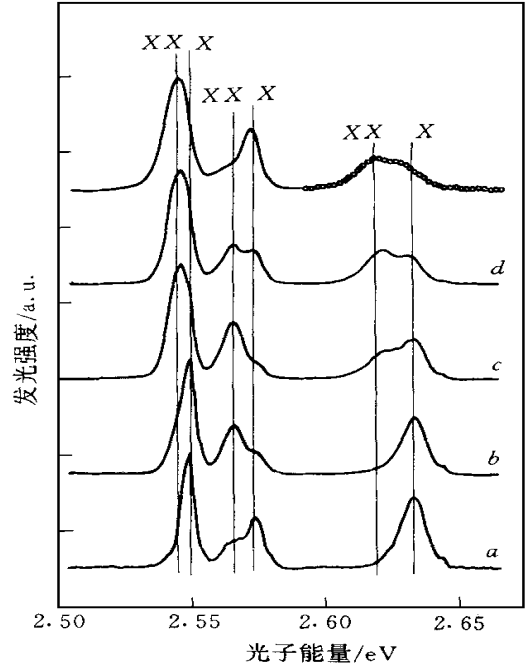


图 2 样品 B 的低温光致发光谱
激发光为 Ar^+ 激光器的 457.9nm (2.707eV) 线

从图 1 可以看出: 在低激发密度下(图 1a, 6mW/cm²), 窄阱中出现两个发光峰 XX 和 X , 能量相差 9.8meV, 且 XX 的强度小于 X 的强度 随着激发强度的增加(图 1b, 0.89W/cm²), XX 与 X 之间的相对强度发生改变, XX 峰相对 X 峰呈现超线性增长 当激发强度为 18.0W/cm² 时(图 1c), XX 峰已大大强于 X 峰

图 2 中来自窄阱(2.5nm)和宽阱(10nm)的两组峰随激发功率的变化与图 1 中的 X 和 XX 峰相似: 随着激发强度的增加, 低能峰 XX 的强度相对高能峰 X 呈超线性增长 对于宽

度为 5.0nm 的阱,当激发强度小于 $4.1\text{W}/\text{cm}^2$ 时, XX 峰和 X 峰的强度随激发功率的变化关系是与其它各组峰类似的 但当激发功率继续提高, XX 峰呈现饱和, X 峰的相对强度迅速增加

对图 1 和图 2 中的 X 和 XX 峰,文献中已有许多报道^[4-6],它们已被证明是 $\text{ZnCdSe}/\text{ZnSe}$ 量子阱中的激子(X)和双激子(XX)发光 对于发光峰 XX ,指认其具有双激子特性的一个重要判据是其超线性行为,即 XX 峰的积分强度与激发强度的超线性关系 图 3 给出了样品 A 中 XX 和 X 峰的强度与激发功率的关系 其中的圆(方)点是 XX (X) 的实验结果 对图 3 可采用下面的速率方程来进行定量化的描述^[9]:

$$\frac{dn_x}{dt} = G - \frac{n_x}{t_x} - B n_x^2 + \frac{n_{xx}}{t_{xx}}$$

$$\frac{dn_{xx}}{dt} = \frac{1}{2} B n_x^2 - \frac{n_{xx}}{t_{xx}}$$

其中 n_x (n_{xx}) 是自由激子(双激子)的密度; t_x (t_{xx}) 是激子(双激子)的寿命; G 是自由激子的产生速率; B 是双激子的形成速率 在连续激发的条件下,方程的稳态解为:

$$\frac{n_x}{n_0} = (1 + 2g)^{1/2} - 1$$

$$\frac{n_{xx}}{n_0} = \frac{1}{2} \frac{t_x}{t_x} \left(\frac{n_x}{n_0}\right)^2$$

其中 $n_0 = 1/(B t_x)$, $g = B t_x^2 G$. 图 3 中实线是拟合结果 可见,在实验给出的激发强度的变化范围内, XX 和 X 的强度随激发功率的变化可由激子-双激子速率方程很好地描述

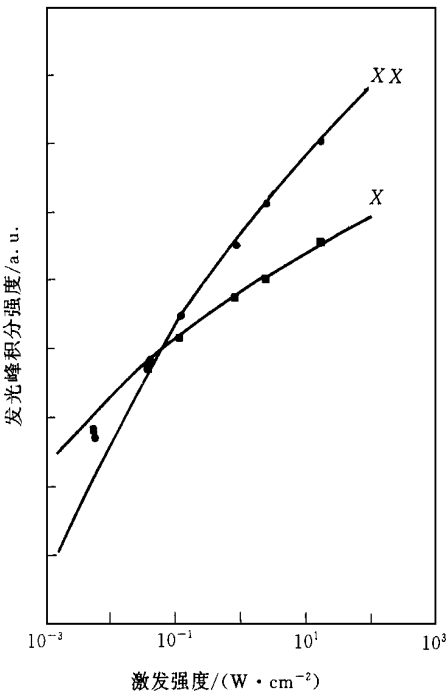


图 3 样品 A 中激子、双激子的发光强度与激发强度的关系

在样品 B 中,宽度为 10nm 和 2.5nm 的阱中的两个峰 XX 和 X ,同样可以用上面的速率方程进行描述,并且实验与拟合的结果一致 对宽度为 5.0nm 的阱中的两个峰,当激发强度超过 $\sim 4.0\text{W}/\text{cm}^2$ 时,速率方程必须计及双激子的离化过程,这一现象将在另一篇文章中给予详细讨论^[9].

双激子发光谱的线型也与自由激子峰不同,参照 Kuang 等人给出的结果^[8],并考虑到量子阱中激子和双激子的二维特性,可以用下面的表达式来拟合双激子的发光峰:

$$J(E) = \frac{n(\epsilon)\Gamma d\epsilon}{(E - \epsilon)^2 + \Gamma^2}$$

其中 E 为光子能量; $n(\epsilon)$ 为 Boltzmann 分布,是由于碰撞而导致的激子与双激子之间的能级移动; Γ 为拟合参数 图 1 中曲线 c 和图 2 中的圆点线给出了线型拟合的结果,其中双激子峰采用上述表达式,激子峰采用高斯线型拟合 可见,实验与拟合结果是一致的

在准二维体系中,由于量子阱的空间限制效应,使得激子和双激子的束缚能与量子阱的宽度有

关^[2,10]. 在样品A 和B 的低温发光谱中, 我们可以得到阱宽分别为 2.5nm、3.8nm、5.0nm、10.0nm 的 Zn_{0.78}Cd_{0.22}Se/ZnSe 单量子阱中的双激子束缚能, 如图 4 中的圆点所示. 图中的方点取自文献[6], 图中的虚线给出了实验值的平滑连接. 可以看出随着阱宽的减小, 双激子束缚能逐渐增加. 对阱宽较小的情况, 我们所得到的结果是与文献报道一致的. 对于阱宽大于 6.5nm 的 ZnCdSe 量子阱, 迄今为止, 在文献中尚未有双激子束缚能的实验数据. 我们在实验中测得宽度为 10nm 的量子阱中双激子的束缚能为 4.0meV.

需要指出的是, 对应图 1 曲线 a, 激发强度仅为 6 mW/cm², 即可以看到明显的双激子峰, 而对应图 2 曲线 a, 激发强度甚至更小, 仅为 0.6 mW/cm² 时即可以看到双激子峰, 这里所用的激发强度比文献中报道的^[8]低三个数量级. 双激子效应的增强主要是激发光子能量较小, 只在阱内激发的结果. 实验中所用激发源 Ar⁺ 激光器 457.9nm (2.707eV) 线的能量低于 ZnSe 势垒的禁带宽度 2.821eV, 这种激发条件大大有利于双激子的形成. 为了验证这一点, 我们采用 He-Cd 激光器的 325.0nm (3.814eV) 线作为激发源来进行对比. 图 5 是样品B 在 325.0nm 激光激发下的发光谱. 图中 a, b, c, d 四条谱线对应的激发强度分别为 0.001、0.02、0.7、15W/cm². 从图 5 中可看出, 当激发强度从 0.001W/cm² 增加到 15W/cm², 虽然增加了四个量级, 但并未观察到明显的双激子发光. 对比图 2 谱线 c 和图 5 谱线 d 也可以看出, 虽然前者的激发强度 (4.1W/cm²) 低于后者的激发强度 (15W/cm²), 但图 2 谱线 c 中的双激子发光强度明显大于图 5 谱线 d 中的双激子发光强度. 因此, 阱内激发比高于势垒上的激发对双激子的形成更为有利. 关于双激子的形成和激发光子能量的关系不在此作进一步讨论.

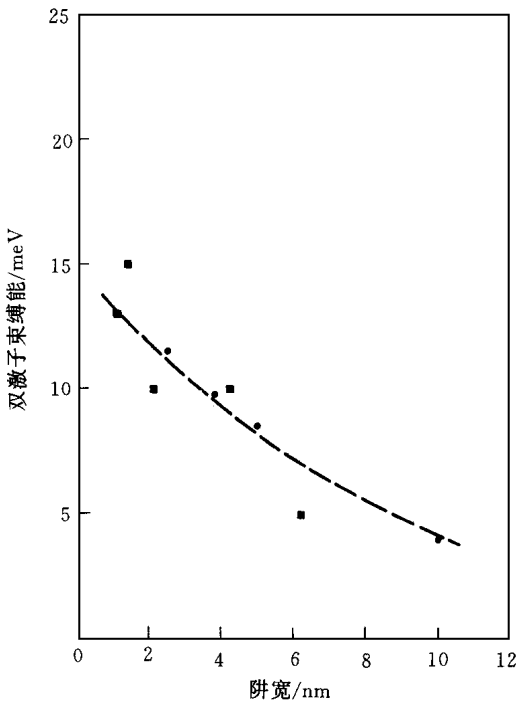


图 4 双激子束缚能与量子阱宽度的关系

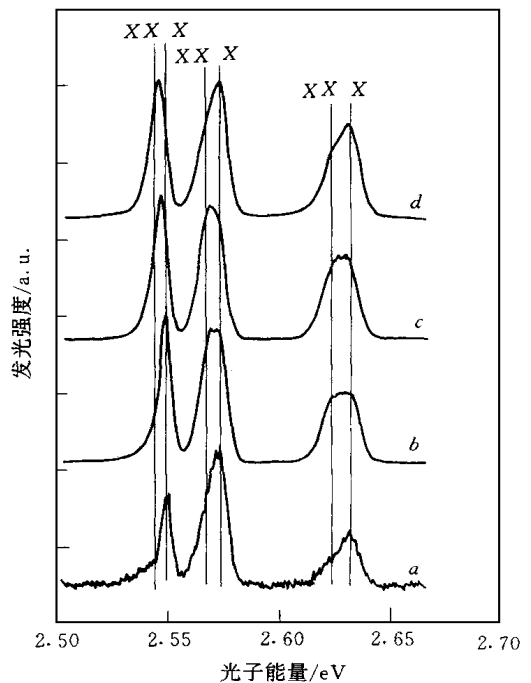


图 5 样品B 的低温光致发光谱
激发光为 He-Cd 激光器的 325.0nm (3.814eV) 线

结论: 在用分子束外延生长的 ZnCdSe/ZnSe 单量子阱结构中, 观察到了双激子的发光 得到了阱宽为 2.5~ 10nm 范围内量子阱中的双激子束缚能 实验证明: 双激子和自由激子的发光强度与激发功率的关系可用速率方程定量地描述 实验还发现, 在激发光子能量较小的条件下, 双激子的形成速率大大提高 当激发强度仅为 $\sim 1\text{mW}/\text{cm}^2$ 时, 即可观察到双激子发光

参 考 文 献

- [1] R. Miller, D. Kleinman, A. Gossard *et al* , Phys Rev. B, 1982, **25**: 6545
- [2] D. A. Kleinman, Phys Rev. B, 1983, **28**: 871.
- [3] Q. Fu, D. Lee, A. Mysyrowicz *et al* , Phys Rev. B, 1988, **37**: 8791.
- [4] U. Neukirch, D. Weckendrup, J. Cutowski *et al* , J. Crystal Growth, 1994, **138**: 861.
- [5] F. Kreller, M. Lowisch, J. Puls *et al* , Phys Rev. Lett , 1995, **75**: 2420
- [6] Mukul C. Debnath *et al* , Nonlinear Optics, 1997, **18**(2~ 4): 219.
- [7] K. Herz, T. Kummell, G. Bacher *et al* , Phys Stat Sol (A), 1997, **164**: 205.
- [8] G. Kuang, W. Gebhardt, E. Griebel *et al* , Appl Phys Lett , 1997, **70**: 2717.
- [9] Wei Yanfeng, Huang Daming *et al* , to be published
- [10] D. Birkedal, J. Singh, V. G. Lyssenko *et al* , Phys Rev. Lett , 1996, **76**: 672

Biexciton Photoluminescence From Single ZnCdSe/ZnSe Quantum Wells

Wei YanFeng, Huang Daming, Wang Xingjun, Yu Gencai,
Zhu Changsheng, Wang Xun

(State key Laboratory of Surface Physics Laboratory, Fudan University, Shanghai 200433)

Received 10 October 1998, revised manuscript received 28 November 1998

Abstract The biexciton photoluminescence is observed from a series of ZnCdSe/ZnSe single quantum wells. The relation between the biexciton binding energy and the well width is obtained. The intensity of the exciton and biexciton photoluminescence as a function of the excitation density is quantitatively explained by using the exciton-biexciton rate-equations. The biexciton effect is found to be greatly enhanced under the excitation of the photons with low energy.

PACC: 7855, 7135, 7865