

高激发密度下 $ZnSe-ZnS/CaF_2$ 超晶格的自由激子发光及光学非线性

申德振 范希武 范广涵

(中国科学院长春物理研究所,长春 130021)

1990 年 11 月 19 日收到, 1991 年 3 月 29 日修改定稿

在 77 K 下用 N_2 激光器的 337.1 nm 脉冲激光线作为激发源, 研究了高激发密度下 $ZnSe-ZnS/CaF_2$ 超晶格的自由激子发光特性及激子的光学非线性。对于该超晶格体系, 首次观察到激子-激子散射发光, 激子饱和吸收及光学双稳现象。并根据激子态的填充效应很好地解释了实验中观察到的随激发光强增加出现激子发光和吸收的蓝移现象。

一、引言

$ZnSe$ 是 II-VI 族宽禁带半导体材料, 具有较大的激子束缚能和较强的光学非线性^[1]。人们利用其较强的激子光学特性已经观察到蓝色受激发射^[2]及光学双稳现象^[3]。以 $ZnSe$ 为阱材料的超晶格由于量子尺寸效应, 大大优化了材料的激子光学特性。为实现高增益的蓝色激光器件及快速激子型光双稳器件提供可能。Andersen 等人^[4]在 77 K 下用泵浦-探测技术研究了 $ZnSe-ZnMnSe$ 超晶格的激子饱和吸收特性。他们认为窄阱时的激子饱和吸收主要来自于激子态的相空间填充和激子库仑屏蔽两种机制的共同效应。Fu 等人^[5]在 10 K 下研究了 $ZnSe/(Zn, Mn) Se$ 多量子阱的激子发光特性, 首次观察到了激子分子发光。在本文中, 我们在 77 K 下研究了不同激发光强下 $ZnSe-ZnS/CaF_2$ 超晶格的激子发光和吸收特性。第一次观察到了 $ZnSe-ZnS$ 超晶格的自由激子与自由激子散射发光, 激子饱和吸收及光双稳现象。并对其物理机制进行了初步的讨论。

二、实验

实验中使用的样品是用 MOCVD 法生长在 CaF_2 衬底上的 $ZnSe-ZnS$ 超晶格, 阵宽和垒宽分别为 4 nm 和 6 nm, 周期为 100。发光光谱是用 UV-24 型 N_2 激光器的 337.1 nm 脉冲激光线作为激发源, 经 Spex 1404 双光栅单色仪分光后用 C_{31034} 型光电倍增管和 4400 型 Boxcar 取样积分系统进行取样积分获得。激子的光学非线性吸收是采用常用的泵浦-探测技术。泵浦光是 N_2 激光器的 337.1 nm 脉冲激光线, 具有 10 ns 的脉冲持续时间, 30 Hz 的重复频率; 探测光是 N_2 激光泵浦 440 香豆素获得的同步脉冲输出经减光后进行探测。测量装置如图 1 所示。光双稳的测量是 N_2 激光泵浦的香豆素 440 获得的强蓝色激光输出, 调谐到非线性折射率较大的位置进行测量。整个接收

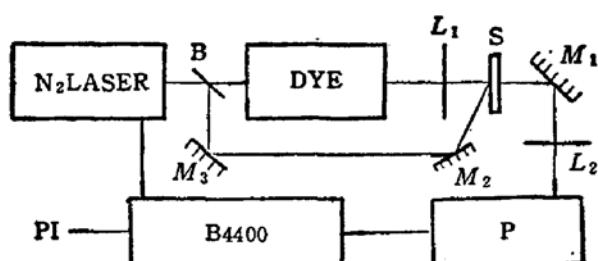


图 1 $ZnSe-ZnS$ 超晶格的激子光学非线性测量装置图 B: 分束板, S: 样品, $L_{1,2}$: 透镜, $M_{1,2,3}$: 反射镜, P: 光电倍增管, B4400:4400 型积分系统, PI: 打印机, N_2 LASER: 氮分子激光器, DYE: 可调谐染料激光器

系统的响应时间为 2 ns。

三、结果与讨论

1. 自由激子发光

图 2 是在 77 K 下不同激发光强的 $ZnSe-ZnS/CaF_2$ 超晶格的发光光谱。由图 2 可知, 当激发密度比较低时, 只有一个发光峰位于 440 nm, 这与我们得到的激子吸收位置 439.5 nm 非常接近, 因此我们认为低激发密度下的发光主要是 $ZnSe-ZnS/CaF_2$ 超晶格的自由激子发光。随着激发光强增加, 在激子发光的低能侧出现了一个新的发光峰并且随着激发光强增加发光强度迅速增加。这与我们早期在 $ZnSe$ 及 $ZnS_{x}Se_{1-x}$ 单晶上获得的 E_x-E_x 射散发光很相似^[6,7]。由于它只在高激发密度下出现, 因此基本上排除了是与杂质有关的发光及激子与电子或声子的散射发光的可能性。可能的发光是 E_x-E_x 散射发光或激子分子的发光。为了区分这两种发光我们做了选择激发光谱, 结果在 E_x-E_x 散射发光的能量位置没有观察到双光子吸收, 因此我们认为该发光不大可能是激子分子发光, 它主要是由于 E_x-Z_x 散射发光。为了进一步研究 $ZnSe-ZnS/CaF_2$ 超晶格在高激发

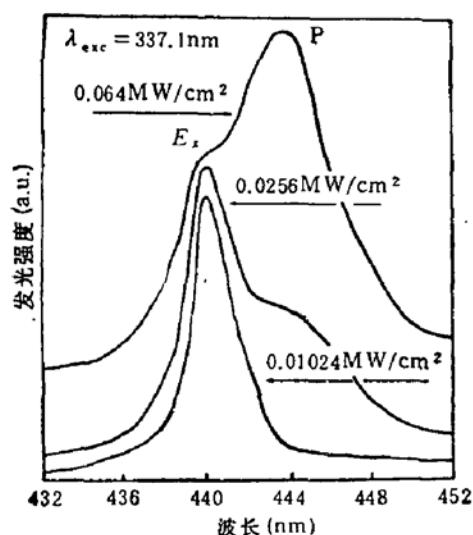


图 2 不同激发密度下 $ZnSe-ZnS/CaF_2$ 超晶格中的自由激子发光光谱

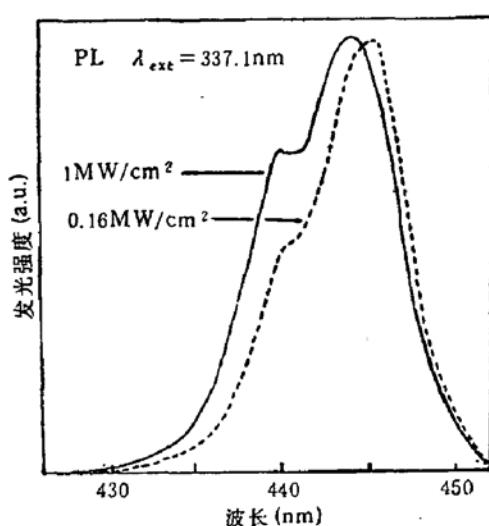


图 3 高激发密度下 $ZnSe-ZnS/CaF_2$ 超晶格的自由激子发光光谱

密度下的激子发光特性, 我们进一步增加激发光强测得的发光光谱如图 3 所示。在图 3 中我们发现了一个有趣的现象, 即当激发光强增加时 E_x-E_s 散射发光增强的同时产生明显的蓝移现象。这很可能与激子态的态填充有关, 因为根据泡利不相容原理, 激发密度高时, 低能的激子态已经填满, 新产生的激子只能占据高能态。这样便产生了激子发光的蓝移现象。

2. 激子的非线性吸收

图 4 是我们在不同泵浦光强下测得的激子吸收光谱。从图 4 我们可以看出, 随着泵浦光强的增加激子吸收峰渐渐饱和, 蓝移并展宽。根据激子的几种主要非线性机制^[3,4], 我们认为可能的非线性机制是激子态的相空间填充效应和激子带展宽效应。前者是由泡利不相容原理所致, 具体表现为吸收蓝移; 后者是由于激子与激子 (E_x-E_s) 相互作用引起的激子带展宽, 具体表现为激子吸收的饱和和展宽。这与我们在高激发密度下的 ZnSe-ZnS/CaF₂ 超晶格中观察到的强 E_x-E_s 散射发光和蓝移的结果是一致, 这进一步说明我们分析的正确性。

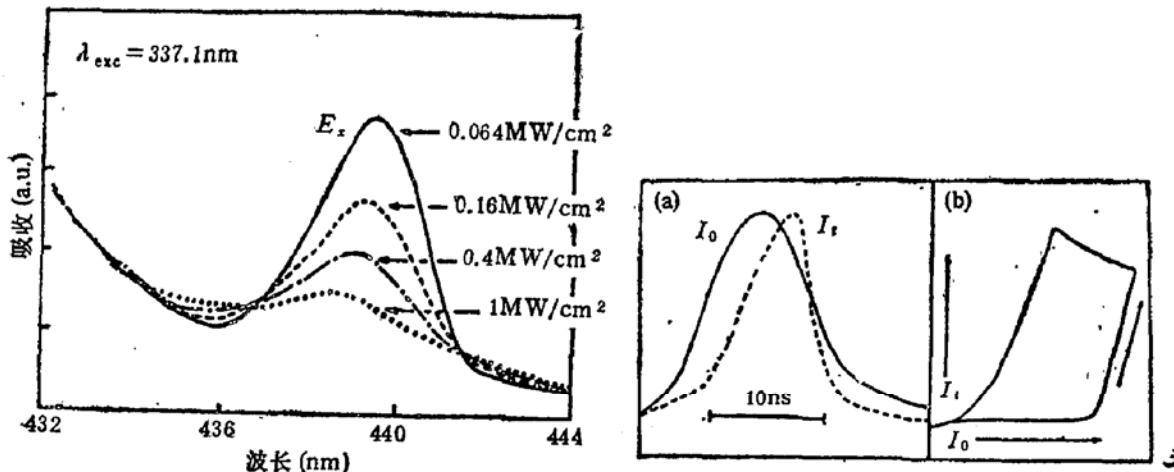


图 4 不同泵浦光强下 ZnSe-ZnS/CaF₂ 超晶格的激子吸收的变化

图 5 ZnSe-ZnS/CaF₂ 超晶格的激子型光双稳

3. 激子的光学双稳现象

根据在 77 K 下 ZnSe-ZnS/CaF₂ 超晶格中观察到的激子饱和吸收特性, 我们选择非线性折射率变化比较大的波长位置 440.5 的脉冲激光输出, 测量了 ZnSe-ZnS/CaF₂ 超晶格在 77 K 下的入射光强与透射光强随时间的瞬态变化及根据透射光强随入射光强变化的光双稳回线如图 5 所示。在图 5(a) 中我们看到透射光强与入射光强随时间的变化明显不同。这说明出现了明显的光学非线性效应。图 5(b) 中展示了明显的光双稳现象。关于它的正反馈机制, 我们认为主要来自于 ZnSe-ZnS 超晶格两表面形成的简单 F-P 腔。因为在样品表面的反射率 R 近似为 0.3, 激子饱和时 F-P 腔的精细度 F 大约为 2.4, 因此产生正反馈是可能的。

四、结 论

综上所述，我们首次在高激发密度下的 ZnSe-ZnS/CaF₂ 超晶格上观察到了 E_x-E_x 散射发光。用泵浦-探测技术测量了 ZnSe-ZnS/CaF₂ 超晶格在不同泵浦光强下的激子吸收，观察到了明显的激子饱和吸收特性并利用激子的饱和吸收特性第一次用单色激光脉冲在 ZnSe-ZnS/CaF₂ 超晶格上观察到了明显的光双稳现象。实验结果表明在高激发密度下的 ZnSe-ZnS/CaF₂ 超晶格中的主要物理机制是激子态的相空间填充和激子与激子碰撞引起的激子带展宽。

参 考 文 献

- [1] N. Peyghambarian *et al.*, *Appl. phys. lett.*, 52(3), 182 (1988).
- [2] X. W. Fan *et al.*, *J. Crystal Growth* 101, 944 (1990).
- [3] V. P. Gribkovskii *et al.*, *Phys. Stat. Sol. (b)* 150, 761 (1988).
- [4] D. R. Andersen *et al.*, *Appl. phys. lett.*, 48(23), 1559 (1986).
- [5] Q. Fu *et al.*, *Phys. Rev.*, 13 37 (15) 8791 (1988).
- [6] 申德振等, *发光学报* 9 (1) 26 (1988).
- [7] D. Z. Shen *et al.*, *Springer Proceedings in Physics* 38, 761 (1989).

Free Exciton Emission and Optical nonlinearities of ZnSe-ZnS/ CaF₂ Superlattices Under High Excitation Density

Shen Dezhen, Fan Xiwu and Fan Guanghan

(Changchun Institute of Physics, Academia Sinica, Changchun, 130021)

Abstract

The free exciton emission and optical nonlinearities in ZnSe-ZnS grown by MOCVD on CaF₂ substrates have been studied under different excitation densities at 77K. We report the first observation of the new emission band due to Ex-Ex interaction, exciton saturating absorption and exciton optical bistability in ZnSe-ZnS/CaF₂ superlattices. The dominant exciton optical nonlinear mechanism for ZnSe-ZnS/CaF₂ superlattices under high excitation density is the combination of phase space filling of exciton state and exciton band broadening.