

GaAs/AlGaAs 窄量子阱中 激子二维特性的退化 *

袁之良 许继宗 郑宝真 徐仲英

(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 用光荧光(PL)和时间分辨光谱(TRPL)技术研究了 GaAs/AlGaAs 量子阱结构中荧光上升时间 τ_f 和激子谱线半宽(FWHM)随阱宽的变化关系, 发现在窄阱中, τ_f 随阱宽的变化关系与宽阱时的情况恰恰相反, 在窄阱中 τ_f 随着阱宽的减小而增加, 归结为激子二维特性的退化导致声学声子对激子的散射作用减弱造成的。同时观测到窄阱中谱线半宽随着阱宽减小而增加, 这也是因为激子特性由准二维向三维转化造成的。

关键词 时间分辨光荧光谱, 量子阱, GaAs/AlGaAs.

引言

在量子阱结构中, 由于激子波函数在生长方向上受到压缩, 表现出明显的二维特性^[1~5]。与体材料相比, 激子的束缚能变大^[2], 振子强度增加^[5], 复合寿命减小^[3]且表现为阱宽的函数。量子阱中激子的二维特性决定了低温甚至室温下量子阱的光学性质, 这对于新型光电器件的研究具有十分重要的意义^[4]。

对于一个理想的二维量子阱系统, 阔宽越小, 二维特性就越明显。但实际量子阱结构是个有限深势阱系统, 当阱宽窄到一定程度时, 载流子在阱中的限制作用将被削弱, 电子波函数会向势垒贯穿, 其结果将造成二维特性的退化, 已有一些理论和实验证明了这一点。Cebulla^[6]曾在 InGaAs/InP 量子阱中观察到当阱宽小于 40 Å, 激子寿命随阱宽的减小而减小, 我们^[7]在 GaAs/AlGaAs 量子阱中观测到了这一现象。Grundmann 等人^[8]则从理论上得到了在窄阱情况下激子束缚能随阱宽的减小而减小的结果。这些工作均从理论上计算了激子波函数随阱宽的变化, 并很好地解释了实验现象。本文从激子散射过程出发研究激子的二维特性。一般而言, 当样品受到短脉冲光激发后, 量子阱中会产生大量过热载流子(过热激子), 这些非平衡激子将迅速弛豫到基态, 其能量与动量损耗途径主要是通过发射光学声子与晶格交换能量, 通常这个过程很短, 约为几百 fs^[9]。实际过程中还包括声学声子的散射, 这个过程较慢, 大约为百 ps 量级, 在时间分辨光谱中通常表现出缓慢的上升过程。随着系统的维度的降低, 激子与声子的作用就越强^[10,11], 在时间分辨光谱中上升时间变短^[11]。在时间分辨光

* 国家攀登计划资助项目和国家自然科学基金资助项目

本文 1994 年 10 月 25 日收到, 修改稿 1995 年 1 月 28 日收到

谱测量中,我们发现窄阱时荧光强度的上升时间随阱宽的变化规律与宽阱不同,反而随阱宽的减小而增加。这是由于激子维度的下降导致声学声子对激子的散射减弱造成的。同时,还观察到窄阱中激子谱线半宽(FWHM)随着阱宽的减小而减小,这是由于激子波函数大部分贯穿到势垒层中,使得界面起伏对激子跃迁能量的影响减弱。

1 实验

实验样品是用 MBE 法生长的 GaAs/Al_{0.4}Ga_{0.6}As 的单量子阱样品,包括 5 个单阱(分别记为 SQW-I ~ SQW-V),阱宽依次为 3、6、11、19、25 个单层(每个单层厚度为 2.83 Å),阱与阱之间是 300 Å 的 Al_{0.4}Ga_{0.6}As 垒层。采用光荧光实验方法,测量了上述样品的低温光荧光谱。测量温度为 10K,用染料激光器激发,波长选择为阱内激发,激发功率为 1.5W/cm²。时间分辨光谱测量系统由同步泵浦染料激光器(<10ps, 82MHz)和条纹相机组成。整个系统的时间分辨率约为 30ps。

2 结果与讨论

图 1 给出 GaAs/AlGaAs 单量子阱样品在 T=10K 下的光荧光谱,分别对应于 5 个阱的激子发光峰。从光谱中可以看出,每个峰都是对称的,线宽较窄,同时具有很强的发光强度,这说明样品具有很好的质量。

图 2 给出了不同阱宽量子阱在 10K 下激子发光的荧光衰退曲线。这些曲线的共同特征是光脉冲过后,荧光强度逐渐加大,并达到一个最大值,然后随着延迟时间的增加,荧光强度

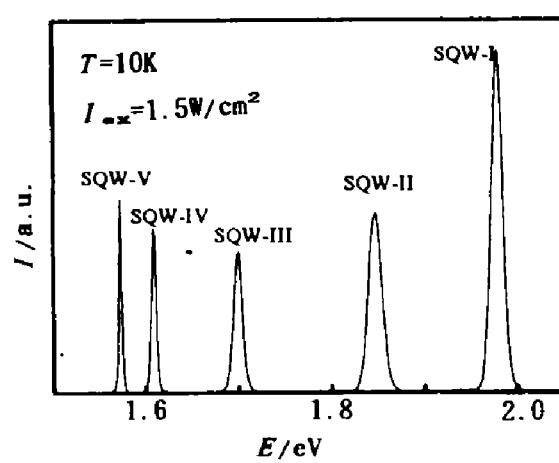


图 1 低温光荧光谱

Fig. 1 PL spectrum at low temperature

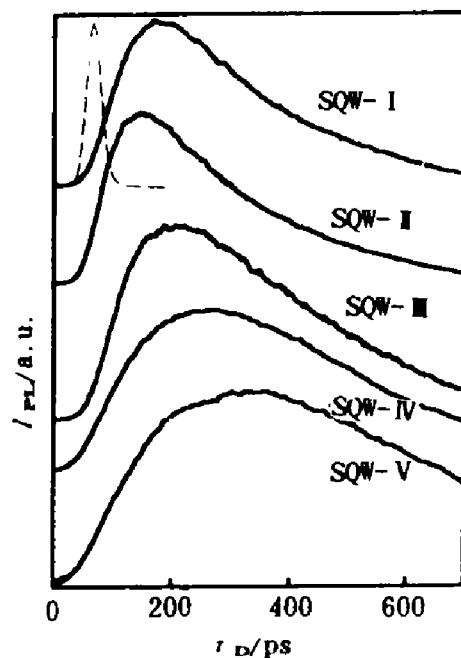


图 2 不同阱宽量子阱的时间分辨光谱。
图左上角虚线为激光谱线

Fig. 2 Time-resolved PL spectra of quantum wells with various widths, the dashed line represents the laser profile

又开始呈指数衰减。由于光激发产生的电子空穴对在很短时间内形成激子，并具有多余能量和动量，这些非平衡激子（热激子）并不能马上辐射复合发出光子，而是先通过各种散射过程驰豫到基态，然后再复合。因此，荧光强度上升过程应对应于热激子的冷却过程。定义上升时间 τ_s 为激子发光强度达到最大值时所需要的时间^[2]，从 SQW-I 到 SQW-V，测得上升时间依次为 190、150、210、270 和 350ps。我们把上升时间表示成阱宽的函数，其结果如图 3 所示。阱较宽时（>4 单层），上升时间随着阱宽的减小而减小，这与以前的计算^[13]和实验结果^[10,11]一致。这是由于随阱宽的减小，增加了激子的二维特性，从而导致散射率的增加。有趣的是，当阱宽进一步减小时，上升时间并不是如理论所预测的那样继续减小，而是增加。这是第一次观测到随着阱宽的减小激子的冷却速率反而下降的现象。

前面已经指出，不同的荧光上升时间主要是由声学声子的散射过程决定的，在量子阱中，二维效应强烈地影响了散射率的大小。激子由初始态通过发射声学声子到终态的散射率可表示为^[13]

$$W_s = \frac{f(T)}{L_z} [D_c - D_v]^2, \quad (1)$$

其中 L_z 为阱宽， $f(T)$ 为不依赖于阱宽的函数， D_c, D_v 分别为导带和价带的畸变势。在式(1)中，散射率反比于阱宽，当 $L_z \rightarrow 0$ ，散射率将趋于无穷大，这意味着荧光上升时间进一步变短，显然，这与我们的实验事实不符合。其原因在于他们在式(1)推导中采用的激子变分波函数具有无限深方阱的形式，在 $L_z \rightarrow 0$ 时，系统趋向于纯二维系统，而实际上由于激子波函数向势垒层的贯穿，激子特性却是向三维转化。为此，引入有效阱宽^[2]

$$L_z^* = L_z + \frac{2}{K_{be}} + \frac{2}{K_{bh}}. \quad (2)$$

其中， K_{be}, K_{bh} 分别为电子和空穴在阱深为 V 、宽为 L_z 的一维方势阱中运动的超越方程的解，方程式^[2]为

$$K_w L_z = P\pi - 2\arcsin \left[\frac{K_w/m_w}{\sqrt{K_w^2/m_w^2 + K_b^2/m_b^2}} \right], \quad (3)$$

其中 $K_w = \frac{\sqrt{2m_w E}}{\hbar}$, $K_b = \frac{\sqrt{2mb(V-E)}}{\hbar}$, E 为势阱中束缚能级能量。

K_{be} (K_{bh}) 为电子 (空穴) 波函数在势垒层中的特征波矢，代表着电子 (空穴) 在势垒层中的扩展程度。因此，由 L_z^* 的定义，不难看出 L_z^* 为具有阱宽 L_z 的有限深量子阱相对应的无限深势阱的阱宽。显然，当 $L_z \rightarrow 0$ 时， $L_z^* \rightarrow \infty$ 。我们在推导散射率时同样采用无限深方势阱激子变分波函数。但是用 L_z^* 代替 L_z ，可得

$$W_s(L_z) \propto 1/L_z^*. \quad (4)$$

图 3 给出了散射率计算结果和上升时间与阱宽的关系，由图 3 我们可以看出在阱宽小于 6 个单层的情况下，散射率随阱宽的减小是急剧下降的。由此可见，在窄阱时由于激子波函数向势垒层的贯穿，激子在空间上的扩展加大，激子特性向三维转化，从而导致激子-声学声子

的耦合减小,致使激子冷却过程减慢,这与实验结果一致。实际上,在阱很窄的情况下,电子与空穴在量子阱中的束缚能级与势垒能量已很接近,这种情况有点类似于 Brener 等^[1]所研究的 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 极浅量子阱($x < 0.5$)的情形,在极浅量子阱中,由于势垒层对电子与空穴的束缚作用的减弱导致了系统由二维向三维的转化。

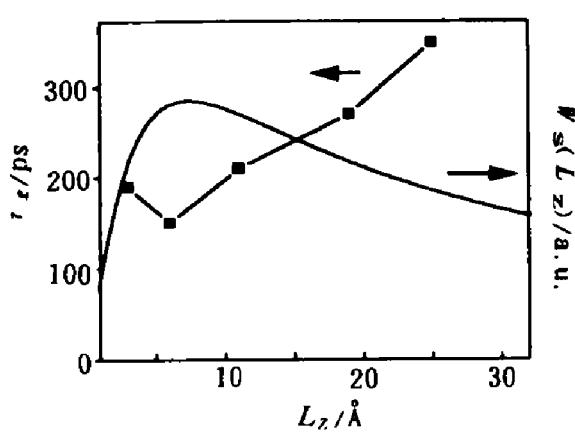


图 3 上升时间、散射率与阱宽的关系
Fig. 3 Well-width dependence of the rising time and the scattering rate

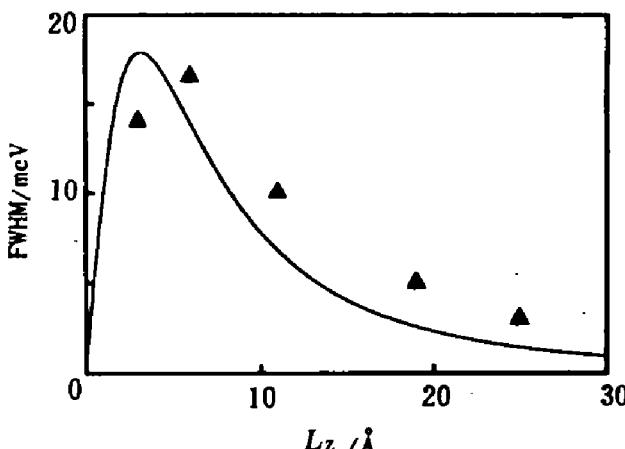


图 4 谱线半宽(FWHM)随阱宽的变化
关系,其中实线为计算结果
Fig. 4 Well-width dependence of FWHM. The dashed line depicts the calculated results

上述激子二维特性的退化还反映在激子线宽与阱宽的关系上,图 4 给出荧光谱线线宽与阱宽的关系,从中可以看出:激子的谱线半宽(FWHM)并不是随着阱宽的减小而一直增大,当半宽达到一个最大值时,随着阱宽继续减小,半宽反而减小。

在量子阱系统中,激子谱线的展宽包括本征的和非本征的。本征展宽主要有声子散射展宽与载流子碰撞展宽。由于低激发强度,载流子碰撞展宽是可以忽略的。又因为是在低温下,所以散射展宽主要来自于声学声子的作用^[14]。由前面的计算,声学声子散射率在窄阱时是随着阱宽的减小而减小的,由此可见,散射展宽在窄阱时也随着阱宽的减小而减小。应当指出,上述本征展宽对激子谱线半宽的贡献相对于非本征展宽来说还是比较小的,激子谱线展宽主要来源于非本征展宽^[15]。众所周知,非本征展宽包括界面的不平整性及合金散射引起的展宽。在 GaAs/AlGaAs 量子阱系统中,由于势垒层是合金层,阱宽越小,合金散射对线宽的贡献就越大,因此窄阱时线宽变小不应归结为合金散射的作用,而只能是阱宽起伏造成的结果。界面起伏对谱线的贡献要写为^[15,16]

$$\Gamma = \left[\delta \sqrt{P(1-P)} \frac{d_1}{2a_B} \right] \frac{\partial E_g}{\partial L_z} \Big|_{L_z = \langle L_z \rangle}, \quad (5)$$

其中 d_1 为具有高度为 δ 的界面岛的横向尺寸, a_B 为依赖于阱宽 L_z 的激子玻尔半径^[8], P 为岛的面积占整个界面面积的比例, $\langle L_z \rangle$ 为量子阱的平均厚度。

在无限深势阱中,阱宽越小,激子在空间的扩展范围就越小,其二维特性就越明显, $\partial E_g / \partial L_z$ 将随 L_z 的减小而单调地增加。但是,在量子阱中,在阱宽已经很小时,激子波函数扩展到势垒层部分却越来越重要,随着阱宽进一步减小,激子在空间的扩展范围增大,这将导致

$\partial E_g / \partial L_z$ 随阱宽减小而减小。图 4 给出了由式(5)得出的计算结果, 计算中假设 a_B 为常量, 及各阱具有相同的界面粗糙度。计算结果与实验数据稍有差别, 这是由于在计算中没有考虑 a_B 随 L_z 的变化^[8]。

3 结论

综上所述, 我们观测到了在窄阱中热激子的冷却速度随阱宽的减小而变慢的现象, 这是由于随着阱宽的减小, 激子波函数在空间中的扩展导致激子特性向三维转化, 使得声学声子对激子的散射作用减弱所致。同时, 我们还观察到了激子谱线半宽在窄量子阱中随阱宽的减小而减小的现象, 并归结于阱宽减小导致激子波函数在空间上进一步扩展, 使其二维特性发生退化造成的。

参考文献

- 1 Brener I, Knox W H, Goossen K W, et al. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70**: 319
- 2 Mathieu H, Lefebvre P, Christol P. *Phys. Rev.*, 1992, **B46**: 4092
- 3 Feldmann J, Peter G, Göbel E D, et al. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, **59**: 2337; 1988, **60**: 243
- 4 Jaros M. *Devices and Circuit Applications of II-VI Semiconductor Superlattices and Modulation Doping*, New York: Academic, 1985
- 5 Masumoto Y, Matsuura M. *Surf. Sci.*, 1986, **170**: 635
- 6 Cebulla U, Bacher G, Forchel A, et al. *Phys. Rev.*, 1989, **B 39**: 6257
- 7 Xu Z Y, Jin S R, Luo C P, et al. *Solid State Commun.*, 1993, **87**: 797
- 8 Grundmann M, Bimberg D, *Phys. Rev.*, 1988, **B38**: 13486
- 9 Collings D, Schumacher K L, Raksi F, et al. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **64**: 889
- 10 Oberhauser D, Pantke K-H, Hvam J M, et al. *Phys. Rev.*, 1993, **B47**: 6827
- 11 Furuta T, Shigekawa N, Tomizawa M, *Semicon. Sci. Technol.* 1994, **9**: 453
- 12 Damen T C, Shah J, Chemla D Y, et al. *Phys. Rev.*, 1990, **B42**: 7434
- 13 Thilagam A, Singh J. *Phys. Rev.*, 1993, **B48**: 4636
- 14 Chen Y J, Koteles E S, Lee J, et al. *SPIE*, 1987, **792**: 162
- 15 Singh J, Bajaj K K, Chauduri S, *Appl. Phys. Lett.*, 1984, **44**: 805
- 16 Singh J, Bajaj K K. *J. Appl. Phys.*, 1985, **57**: 5433; *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **48**: 1077

DEGENERATION OF QUASI-TWO-DIMENSIONAL PROPERTIES OF EXCITONS IN NARROW GaAs/AlGaAs QUANTUM WELLS*

Yuan Zhiliang Xu Jizong Zheng Baozhen Xu Zhongying

(*National Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

Abstract By using photoluminescence (PL) and time-resolved photoluminescence (TRPL), the well-width dependence of luminescence rising-time τ_f and the exciton FWHM in very narrow GaAs/AlGaAs quantum wells was investigated. It was found that τ_f increases with decreasing well-width. This is attributed to the reduction of acoustic phonon-exciton scattering rate, caused by the degeneration of quasi-two-dimensional properties of excitons in narrow wells. The increase of exciton FWHM with decreasing well-width in narrow wells due to the transition from the quasi-two-dimensional to three-dimensional nature of the excitons was also observed.

Key words time-resolved photoluminescence, quantum wells, GaAs/AlGaAs

*The project supported by the State Key Program for Basic Research and by the National Natural Science Foundation of China