

量子阱光学过程的瞬态特性

徐仲英 葛惟锴

(中国科学院半导体研究所)

当量子阱材料注入(例如光注入)大量非平衡载流子时,非平衡载流子的动力学过程可分为两个过程:一是高激发过剩非平衡载流子的快速弛豫过程,即热载流子通过发射纵向光学声子(LO声子)与晶格交换能量、释放能量。描述这个过程的主要物理量是LO声子的散射时间常数 τ_s ,其时间域大约为几个ps到几十个ps,取决于激发强度、量子阱宽度等。另一个过程是弛豫到导带底(价带顶)的载流子通过辐射复合放出光子,即辐射复合发光。描述这个过程的主要物理量是发光寿命 τ 。

一、量子阱中辐射复合发光动力学过程研究

在量子阱结构中,载流子复合发光动力学过程和体材料相比有明显的差别。由于载流子在窄阱中的局域化,相应激子半径减小,辐射复合几率大大增加,因而载流子寿命明显减小,低温下寿命一般在亚毫微秒量级,并且表现为阱宽的函数:阱越窄,载流子局域化越强,复合几率越大,寿命越短。同时,影响量子阱中复合发光过程的因素要比体材料中的情况复杂得多。不同温度下复合发光机构的变化,多个子能带对发光的贡献以及异质结界面、晶体材料光学质量等因素都将直接影响量子阱中的复合发光寿命。

低温下研究量子阱中激子发光动力学过程最有代表性的实验,是西德马普研究所的Göbel等人的工作^[1]。他们的实验样品用分子束外延(MBE)生长,用同步原浦若丹明6G染料激光器作激发光源,用条纹相机探测记录,

物理

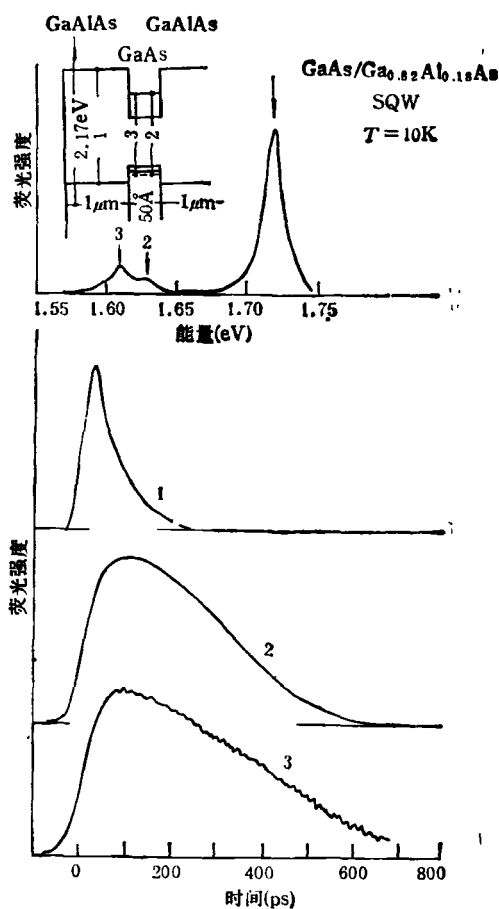


图1 GaAs-GaAlAs单量子阱结构($L_w = 50 \text{ \AA}$)的光荧光谱和时间分辨光谱

系统分辨率为25ps,实验结果如图1所示。图1的上半部是常见的光荧光光谱,同时画出了相应的样品结构。图1下半部为条纹相机记录得到的不同能量位置的荧光衰减曲线,其中1,2和3曲线分别对应表面GaAlAs限制层发光和GaAs量子阱中 $n=1$ 的轻、重空穴激子发光,其光子能量分别为1.724eV,1.613eV和

1.627eV, 激发光光子能量为 2.17eV. 实验发现, GaAlAs 限制层中的发光衰退过程远比 GaAlAs 体材料的快得多, 这反映了光激发载流子在 GaAlAs 中的扩散、输运以及被量子阱快速俘获的过程. 由图 1 还可以看出, 不同能量位置的荧光强度变化曲线不同, 并由此可直接得到发光寿命 τ . 对于 $n=1$ 重空穴激子发光, 寿命 $\tau = 350\text{ps}$ ($L_s = 50\text{\AA}$), 而高能载流子的寿命要短得多, 这是因为决定高能载流子平均寿命的主要因素是快速弛豫过程. 图 2 给出了发光寿命和阱宽 L_s 的关系, 不同实验点取自不同结构的样品和不同的激发强度, 图 1 中用倒三角表示体材料的相应寿命. 可以看出, 阱越窄, 寿命越短, 这是因为二维激子波函数的局域化使电子、空穴波函数重叠加强, 激子振子强度增大的缘故. 这个实验结果对于量子阱光电器件(例如量子阱激光器)的研制具有特别重要的意义.

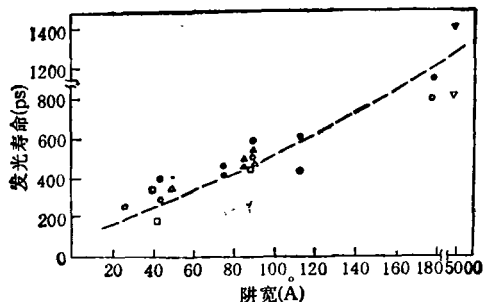


图 2 量子阱中发光寿命和阱宽的关系

J. Christen 等人^[2]用时间分辨阴极荧光光谱研究了量子阱中由于局域化造成的激子跃迁速率的增强, 测定了载流子从 GaAlAs 势垒层 ($L_B = 176\text{\AA}$) 到 GaAs 势阱层 ($L_B = 52-113\text{\AA}$) 的输运时间. 从基本动力学关系出发, 根据 GaAlAs 层和 GaAs 层发光强度之比, 可直接推得载流子从势垒层到势阱层的输运时间为 $1.5 \times 10^{-13}\text{s}$. 他们还研究了势阱宽度对量子阱发光寿命的影响, 得到基本上和前述结论相同的结果.

变温实验表明^[3], 量子阱材料在低温下表现的激子发光特性在较高温度下可以转变成自

由载流子发光, 从器件应用角度看, 室温下的发光特性具有更现实的意义. Y. Arakawa 等人^[4]用光荧光相移法研究了不同温度下 GaAs-GaAlAs 量子阱结构的复合发光寿命, 认为 300 K 下量子阱的发光机构是子能带间的自由载流子跃迁, 其发光寿命正比于温度 T , 而体材料的相应寿命则正比于 $T^{3/2}$, 复合发光寿命与载流子浓度成正比. 在低温下(100 K), 发光寿命基本不随激发强度而变, 如图 3 所示. 图 3 中实线是根据自由载流子复合发光模型计算得到的. 可见 300K 时量子阱发光符合自由载流子复合发光模型, 而低温下则表现为激子发光特性.

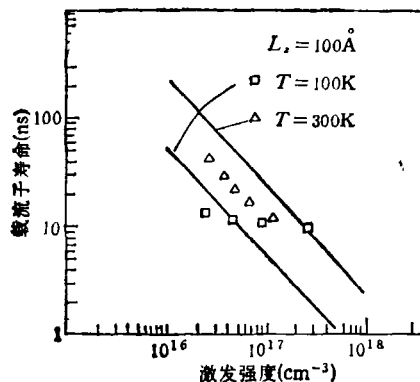


图 3 不同温度下量子阱的复合发光寿命和激发强度的关系

由于载流子的热激发, 室温下的发光过程还会因为高序数子能带的参与变得复杂得多, 往往很难用一个单一的指数函数来描述. 最近 Christen 等人^[5]提出一个简单的模型, 用来描述多个子能带参与并同时存在带内弛豫时的发光动力学过程, 整个系统的速率方程用四个联立线性微分方程表示, 其解可近似写成三个指数函数的和:

$$I(t) = C_1 \exp[-t(1/\tau)] + C_2 \exp[-t(1/3\tau + 1/\tau_h)] + C_3 \exp[-t(1/\tau + 1/\tau_c)], \quad (1)$$

其中

$$\tau = \tau(e, hh)_1 = \tau(e, hh)_2 = \tau(e, lh)_1/3,$$

C_i 为常数. 其他符号的意义如图 4 所示.

此外, GaAlAs 势垒层、GaAs 势阱层的

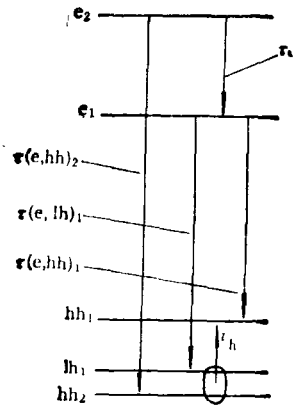


图4 多个子能带参与并存在带内弛豫时的发光动力学模型

光学质量对量子阱中的复合发光寿命也有重要影响。Dawson 等人^[6]发现,材料的发光效率与发光寿命之间有一定的对应关系;异质结界面缺陷会形成新的载流子俘获中心,从而影响整个发光动力学过程^[7]。

总之,在量子阱复合发光动力学研究方面虽然有了一些初步结果,但仍有不少问题有待深入,例如阱与阱之间载流子的扩散和输运,异质结界面复合的影响以及各子能带对发光过程的贡献等等,还需要做更多的实验和理论工作。

二、量子阱中非平衡载流子 ps 级弛豫过程的研究

量子阱结构中非平衡载流子快速弛豫过程的研究是当前一个十分活跃的课题,它不仅有助于深入了解低维系统中有关载流子散射、电子-声子相互作用等许多重要物理过程,同时也是发展以载流子输运为基础的高速量子器件的基础。由于上述快速弛豫过程极短,因此实验研究上需要采用高时间分辨率的(ps 级的)光谱技术。目前用得最多的是各种非线性光学测量技术(包括荧光相关测量技术和频率上转换技术等)。

非线性荧光相关技术^[8]已发展成为一种新的 ps 级时间分辨光谱技术^[9],它用于研究

物理

GaAs-GaAlAs 多量子阱结构中非平衡载流子的快速弛豫过程,可定量给出电子-声子散射的时间常数。测量技术的基本原理是基于发光的非线性特性。当两个激光脉冲同时激发样品时($\Delta t = 0$),荧光强度将非线性地增强,形成一个荧光相关峰,荧光相关信号随延迟时间 Δt 的变化直接反映了载流子分布的时间变化过程。荧光相关峰和两脉冲之间延迟时间 Δt 的关系可表示为:

$$PL(\Delta t) \sim \int_{-\infty}^{+\infty} dx \exp(-|x|/\tau_c) \cdot AC(\Delta t - x), \quad (2)$$

式中 x 为时间量纲的任意变量, τ_c 为电子平均寿命, AC 是激光脉冲的自相关函数。当激光脉冲远小于热电子弛豫时间时,(2)式简化为

$$PL(\Delta t) \sim \exp(-|\Delta t|/\tau_c). \quad (3)$$

(3)式实际上反映了某一特定能量位置(状态)的载流子复合发光强度,也即参与复合发光的载流子随时间的变化。图5为我们测量的一个样品中不同电子能量位置的荧光相关峰^[9],电子能量位置间实际能量与 $n=1$ 电子子能带能量之差用 $E - E_{1c}$ 表示。根据(3)式,由图5可直接求得不同能量位置的电子平均寿命,如图6所示。可见电子平均寿命不但与电子能量有关,而且还与阱宽 L_z 有关,阱宽越窄,弛豫变慢,寿命增加。这个结果清楚地表明,量子阱结构参数 L_z 对热电子弛豫过程有明显的影响。同时,由此还进一步得到电子系统冷却的时间演变过程,不同延迟时间和电子温度的关系如图7所示。分析电子冷却过程和电子系统能量弛豫过程的关系,并假定 LO 声子散射是能量损耗的主要机理,可以具体建立光学声子散射过程和电子温度 T_e 变化过程的关系:

$$K \frac{dT_e}{dt} + \frac{\hbar\omega_{LO}}{\tau_0} \exp(-\hbar\omega_{LO}/KT_e) = 0, \quad (4)$$

其中 $\hbar\omega_{LO}$ 为 LO 声子能量, τ_0 为 LO 声子散射的时间常数, τ_0 越大,表示声子散射几率越小,电子能量损耗越慢。用(4)式去拟合图7所示的实验数据,可以得到:

$$\tau_0 = 42 \text{ps} (L_z = 40 \text{\AA}),$$

$\tau_0 = 20\text{ps}$ ($L_s = 98 \text{ \AA}$).
 这些数值都远远大于体材料 GaAs 中相应的 τ_0 值 ($\sim 0.1\text{ps}$). 这个实验明确指出了声子散射过程与阱宽的联系.

Ryan 等人^[10] 在 $L_s = 258 \text{ \AA}$ 的调制掺杂

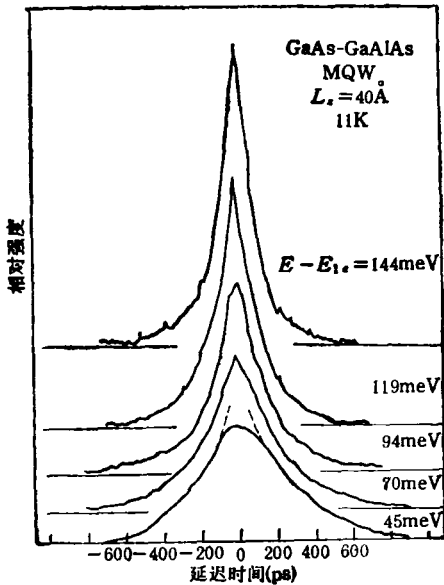


图 5 不同电子能量位置的荧光相关曲线 (激发强度为 $\sim 5 \times 10^{18}/\text{cm}^3$)

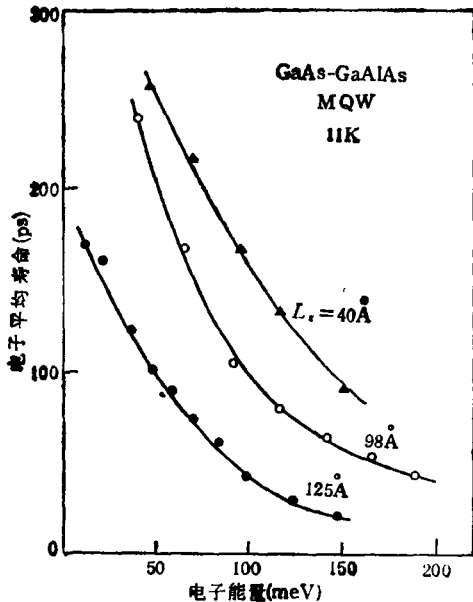


图 6 不同阱宽的多量子阱结构中热电子平均寿命和电子能量位置之间的关系

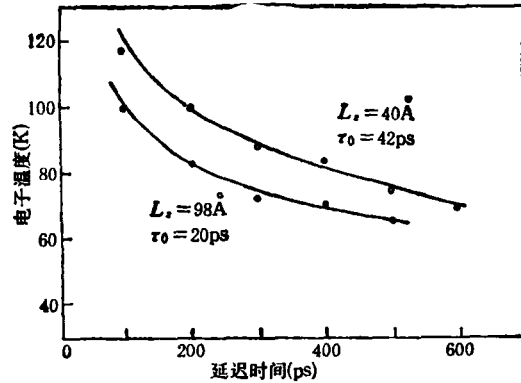


图 7 电子温度 T_e 随延迟时间 Δt 的变化

多量子阱结构的材料中, 测得 $\tau_0 = 7\text{ps}$. 他们用同步泵浦染料激光器作激发光源, 激发光子能量为 2.03eV , 用同步扫描条纹相机作为探测器, 系统分辨率为 20ps . Shah^[11] 等人采用频率上转换技术研究了调制掺杂 GaAs-GaAlAs 多量子阱结构中的非平衡载流子能量弛豫过程. 由于采用掺杂 (n 型或 p 型) 样品, 激发强度较低, 实验上分别得到了电子、空穴的弛豫速率. 研究表明, 电子能量损耗速率远比空穴能量损耗速率慢, 约相差 25 倍, 如图 8 所示.

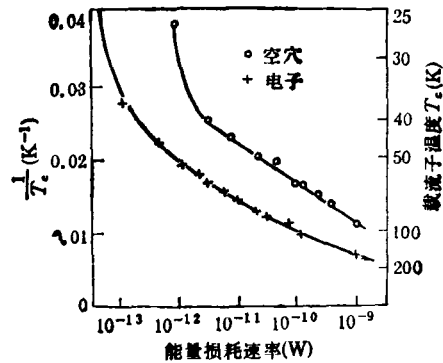


图 8 电子、空穴能量损耗速率与载流子温度的关系

量子阱结构中热载流子能量损耗速率变慢, 声子散射时间常数变长, 这一点虽已被实验所证实, 但是在理论上远没有弄清楚. 有几种可能的物理机理: 二维等离子体对电子-声子相互作用的屏蔽作用; 电子简并对高能电子散射的影响; 大量非平衡热声子的存在, LO 声子在阱中的限制对能量释放过程的影响; 二维电

(下转第 298 页)