

ZnCdSe 量子阱/CdSe 量子点耦合结构 中的激子隧穿过程*

金 华 张立功 郑著宏 孔祥贵 安立楠 申德振†

(中国科学院长春光学精密机械与物理研究所 激发态物理重点实验室,长春 130033)

(2003 年 11 月 13 日收到 2003 年 12 月 24 日收到修改稿)

用室温光致发光光谱和飞秒脉冲抽运-探测方法对不同垒宽的 ZnCdSe 量子阱/ZnSe/CdSe 量子点新型耦合结构中激子隧穿过程进行研究,观察到激子从量子阱到量子点的快速隧穿过程,在 ZnSe 垒宽为 10nm, 15nm, 20nm 时,测得激子隧穿时间分别为 1.8ps, 4.4ps, 39ps.

关键词: ZnCdSe 量子阱, CdSe 量子点, 激子, 隧穿

PACC: 7865K, 7135, 7340G, 7847

1. 引 言

量子隧穿过程在半导体物理基础理论和光电子器件应用方面有重要的研究价值^[1-6]. 宽带 II-VI 族半导体材料具有大的激子束缚能, 激子效应显著增强, 成为研究激子隧穿过程的理想材料体系. 近年来, 半导体异质结构中隧穿过程的研究主要围绕非对称双量子阱体系展开^[7,8]. 其中 (Zn, Cd)Se/ZnSe^[9], (Zn, Cd)Te/ZnTe^[10] 及 Mn²⁺ 掺杂的 ZnSe^[11] 基半磁半导体非对称双量子阱结构已被广泛研究. 然而由于在非对称双量子阱结构中, 宽阱中不可避免的激子吸收抑制了激子隧穿, 这给激子光学器件, 特别是具有超快响应的激子光开关器件的研制带来无法克服的困难. 为此, 我们引入量子点, 用量子点代替双阱结构中的宽阱, 设计了 ZnCdSe 量子阱/ZnSe/CdSe 量子点耦合的新型结构. 量子点因具有能级分立、基态密度大, 量子点的吸收截面小, 不会产生共振吸收现象, 可以提高隧穿效率.

本文采用室温光致发光光谱和飞秒脉冲抽运-探测技术研究了 Zn_{0.72}Cd_{0.28}Se 量子阱/ZnSe/CdSe 量子点结构在不同势垒宽度情况下的激子隧穿过程, 观察到从量子阱到量子点的快速激子隧穿过程, 并对实验结果进行了很好的拟合.

2. 实 验

实验所用样品是由分子束外延 (MBE) 方法生长在 (100) 方向的 GaAs 衬底上. 结构如图 1 所示, 包括 1 μ m 的 ZnSe 缓冲层 [CdSe 浸润层-CdSe 量子点层-ZnSe 垒层-5nm Zn_{0.72}Cd_{0.28}Se 量子阱层-ZnSe 垒层] \times 10 个周期, 120nm ZnSe 覆盖层. 其中, CdSe 浸润层为 3 个单原子层厚, 这是获得量子点的最佳厚度^[12,13], CdSe 量子点由 Stranski-krastanov 模式生长在 CdSe 浸润层上, 原子力显微镜 (AFM) 显示量子点形成较好, 量子点半径约为 5nm, 平均实高 10nm, 密度为 10 μ m⁻². 上述结构的样品 A, B 和 C 的 ZnSe 垒层厚度分别为 10nm, 15nm, 20nm. 将样品贴在玻

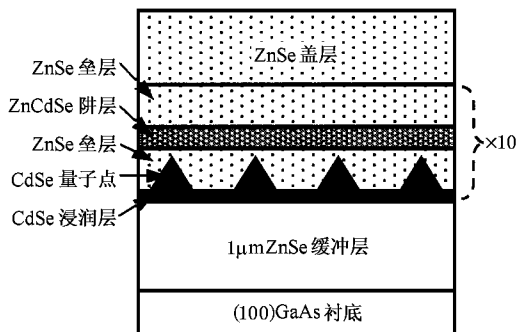


图 1 ZnCdSe 量子阱/ZnSe/CdSe 量子点样品的结构示意图

* 国家自然科学基金(批准号 60278031, 60176003, 60376009)和中国科学院百人计划资助的课题.

† E-mail: dzshen@public.cc.jl.cn; 电话: 0431-6176805.

璃上,用研磨与湿法化学腐蚀的方法去掉 GaAs 衬底,制备可供飞秒抽运-探测研究的器件结构.

3. 结果与讨论

图 2 为上述三个样品的吸收谱. 2.36eV 附近的吸收峰来自 ZnCdSe 量子阱的激子吸收. 由于量子点的空间分布密度小,我们没有明显观察到 CdSe 量子点的吸收,这也证实了这种阱/点耦合结构可避免共振吸收现象的影响.

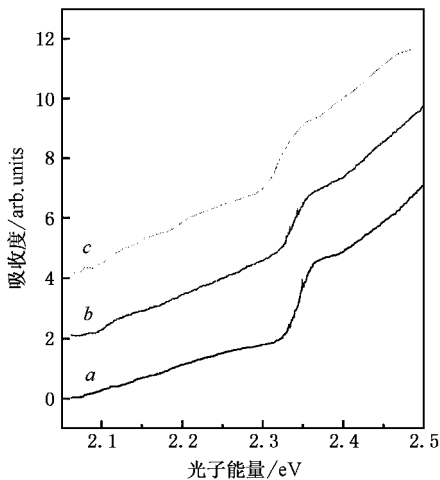


图 2 不同垒宽的 ZnCdSe 量子阱/ZnSe/CdSe 量子点样品的吸收谱, a 为 10nm ; b 为 15nm ; c 为 20nm

图 3 为三个样品室温下的光致发光谱,激发源为 Ar^+ 激光器 514.5nm 线,这一波长靠近 ZnCdSe 量子阱的吸收带边. 发光谱中位于 2.3eV 处的发光峰对应 ZnCdSe 量子阱的激子发光峰. 位于 2.34eV 的窄峰为 ZnSe 界面 2LO 声子伴线. 2.05eV 处宽的发光峰对应 CdSe 量子点的发光. 发光峰的展宽是由于量子点粒径尺寸及空间分布的非均匀性引起的. 我们用量子点的发光强度对三个样品的发光谱进行了归一化处理. 虽然在吸收谱中未明显观察到量子点的吸收,但在发光谱中观察到较强的量子点的发射. 图 3 中的插图给出了 CdSe 量子点与 ZnCdSe 量子阱的发光积分强度比随着垒层厚度的变化. 随着垒层厚度的减小,量子点与量子阱的激子发光积分强度比逐步、明显地增强. 这表明激子密度在量子阱与量子点中重新分配,激子从 ZnCdSe 量子阱隧穿到 CdSe 量子点.

为进一步得到激子从 ZnCdSe 量子阱到 CdSe 量子点的隧穿速率,我们在室温下利用飞秒脉冲抽运-

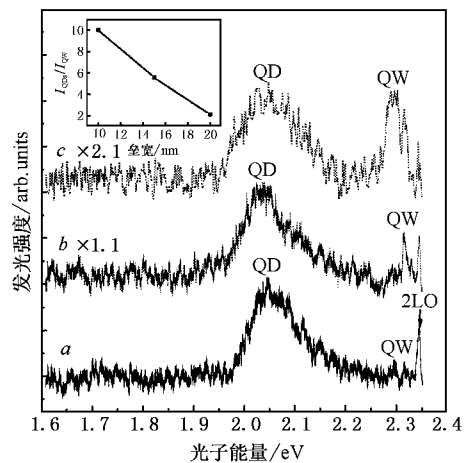


图 3 不同垒宽的 ZnCdSe 量子阱/ZnSe/CdSe 量子点结构样品的室温发光光谱, a 为 10nm ; b 为 15nm ; c 为 20nm . 插图为量子点与量子阱的发光积分强度比随着垒宽的变化关系

探测方法测量了量子阱中的激子衰减速率. 飞秒激光脉冲由钛宝石激光器 (Spectra-Physics) 产生,经光学参量放大器 (OPA-800) 调谐输出. 输出激光脉冲宽度为 130fs 、重复频率为 1kHz 、单脉冲能量为 $5\mu\text{J}$,中心波长调谐在 537nm ,位于样品中量子阱的激子吸收线低能边,避免了垒层及其他原子层的吸收影响. 脉冲激光束经分束镜后分成探测光与抽运光 (抽运-探测光路图将另文给出),两束光的强度比为 $1:15$,探测光经可变光学延迟线后与抽运光非共线的聚焦到样品上. 透过样品的探测光经单色仪分光,由光电倍增管接收. 对抽运光进行斩波作为参考信号,由光电倍增管接收的信号通过锁相放大器后可以直接提取抽运光对探测光透射的强度变化的影响. 探测光透射强度的改变量随延迟时间的变化如图 4 所示.

在低激发强度下,探测光透射强度变化 ΔT 与样品吸收系数一级近似项成线性关系. 吸收系数的变化反应了粒子数分布密度的变化,可以获得激子动力学过程的信息. 改变延迟时间,探测光相对透射强度的变化可以表示为

$$\Delta T = \Delta T_0 \cdot e^{-t/(\tau + \Gamma)}, \quad (1)$$

ΔT_0 为 $t=0$ 时刻相对透射强度, τ 为量子阱中的激子衰减时间, Γ 为抽运光与探测光脉冲宽度之和 (260fs). 量子阱中激子的衰减主要是由于激子复合和激子隧穿引起的. 因此,衰减速率 $1/\tau$ 可表示为

$$1/\tau = 1/\tau_1 + 1/\tau_{re}, \quad (2)$$

其中 τ_1 为量子阱到量子点的隧穿时间, τ_{re} 为激子的本征复合时间. 一般认为垒层厚度对激子复合速率

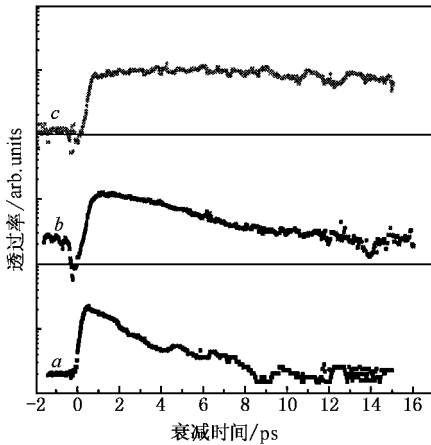


图 4 不同垒宽的 ZnCdSe 量子阱/ZnSe/CdSe 量子点结构样品的透射率随探测光延迟时间的变化关系, a 为 10nm ; b 为 15nm ; c 为 20nm

$1/\tau_{re}$ 的影响很小^[10], 因此可以认为 τ_{re} 与单量子阱中激子衰减时间一致, 在 100ps 范围^[9].

根据(1)式, 对图 4 中的衰减曲线进行拟合, 得到在 ZnCdSe 量子阱中的激子衰减时间, 再由(2)式计算得到激子隧穿的时间 τ_t . 结果列于表 1 中.

表 1 样品 a, b, c 的激子衰减时间及隧穿时间

	a	b	c
ZnSe 垒层厚度 L_b /nm	10	15	20
衰减时间 τ /ps	1.8	4.2	28
隧穿时间 τ_t /ps	1.8	4.3	31.4

从表 1 的拟合结果可以看到 ZnSe 垒层厚度对量子阱中激子的衰减时间有显著影响, 这来源于激子从量子阱到量子点的隧穿. 随着垒层厚度减小, 激子隧穿速率迅速增加, 当垒层厚度为 10nm 时(样品 a)激子从量子阱到量子点的隧穿时间达到 1.8ps. 进一步证实了阱/点耦合结构中激子快速隧穿过程的实现. 在体材料中, CdSe 和 ZnCdSe 的激子本征子能级的能量差很大, 若采用通常的非对称双量子阱结构, 隧穿过程需要多 LO 声子辅助, 不能实现快速

的激子隧穿. 然而在 ZnSeCd 量子阱/CdSe 量子点结构中, 由于量子点粒径尺寸和空间分布的不均匀性及晶格失配应变所导致的量子点能级波动及能带畸变会在量子阱与量子点之间构建与隧穿过程能量匹配的子能级, 使得激子可以实现较高的隧穿速率. 另外, 需要说明的是, 自组装生长的量子点的形状多为圆锥形或金字塔形, 当 ZnSe 垒层外延生长在量子点层上时, 量子点插入到垒层中, 这样对隧穿效率起决定性作用的是 CdSe 量子点的尖部与 ZnCdSe 量子阱之间的 ZnSe 厚度, 这一厚度要小于外延的 ZnSe 厚度. 因此, 在垒层较厚时仍能发生较快的隧穿现象(样品 c).

从图 4 可以观察到, 对于 a, b 样品在透射强度快速衰减后, 还存在一个较慢的衰减过程. 当探测光延迟时间超过 5ps 时, 慢过程明显显现出来. 这可能来源于结构中的另一种隧穿过程, 即激子从 ZnCdSe 量子阱通过 ZnSe 垒层反向隧穿到 CdSe 浸润层, 具体机理将在以后的研究中探讨.

4. 结 论

量子点的引入为隧穿器件的研制带来的好处是: 可以避免在非对称双量子阱中, 激发窄阱时, 宽阱中出现的共振吸收现象, 即难以对某个量子阱独立地进行选择性激发, 也不利于隧穿的进行, 给激子超快器件的研制带来困难. 而量子点的吸收很小, 以至在吸收光谱中观察不到它的吸收, 因此在量子点/量子阱结构中可以避免 CdSe 量子点的吸收而选择激发 CdZnSe 量子阱. 因此, 阱/点耦合结构在隧穿器件研制方面有很好的前景.

总之, 通过室温发光谱和抽运-探测方法观察到在新型 ZnCdSe 量子阱/ZnSe/CdSe 量子点耦合结构中激子快速隧穿过程. 阱/点耦合结构中量子点对激子具有强大的抽取能力, 量子阱与量子点之间快速高效的激子隧穿为在量子阱/量子点耦合结构上研制新型的超快隧穿器件提供了新思路.

[1] Muto S *et al* 1991 *Appl. Phys. Lett.* **58** 2393

[2] Krol M *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **66** 3045

[3] Lury S 1988 *Solid State Commun.* **65** 787

[4] Gajo Y and Zhang Y M 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1340 (in Chinese) [高 阳、章豫梅 1999 物理学报 **48** 1340]

[5] Zhu Y and Wang T H 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 677 (in Chinese)

[竺 云、王太宏 2003 物理学报 **52** 677]

[6] Mao L F *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 974 (in Chinese) [王凌锋等 2000 物理学报 **49** 974]

[7] Tanguy C *et al* 1991 *Appl. Phys. Lett.* **58** 1283

- [8] Hieke K *et al* 1996 *J. Cryst. Growth* . **159** 1014
[9] Ten S *et al* 1996 *Phys. Rev. B* **53** 12637
[10] Haacke S *et al* 1993 *Phys. Rev. B* **47** 16643
[11] Lawrence I *et al* 1994 *Appl. Phys. Lett.* **73** 2131
[12] Kummell T *et al* 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 3105
[13] Lowisch M *et al* 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 2489

Exciton tunnelling in ZnCdSe quantum well/CdSe quantum dots^{*}

Jin Hua Zhang Li-Gong Zheng Zhu-Hong Kong Xiang-Gui An Li-Nan Shen De-Zhen[†]

(*Key Laboratory of Excited State Processes, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China*)

(Received 13 November 2003 ; revised manuscript received 24 December 2003)

Abstract

Exciton tunneling through ZnSe barrier layer of various thicknesses is investigated in a novel $\text{Zn}_{0.72}\text{Cd}_{0.28}\text{Se}/\text{CdSe}$ coupled quantum well/quantum dots (QW/QDs) structure using photoluminescence spectra and near-resonant pump-probe measurements. Fast exciton tunneling from quantum well to quantum dots is observed by transient differential transmission. The tunneling time is 1.8ps , 4.4ps , 39ps for barrier thickness of 10nm , 15nm , 20nm , respectively.

Keywords : ZnCdSe quantum well , CdSe quantum dots , exciton , tunnelling

PACC : 7865K , 7135 , 7340G , 7847

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60278031 , 60176003 , 60376009) and the Program of CAS Hundred Talents.

[†]E-mail : dzshen@public.cc.jl.cn ; Tel 0431-6176805.