

文章编号: 1672-8785(2009)11-0012-05

量子限制效应对受主跃迁的影响

初宁宁 郑卫民 李素梅 宋迎新 刘 静

(山东大学威海分校空间科学与物理学院, 山东 威海 264209)

摘 要: 通过光致发光光谱, 研究了量子限制效应对 GaAs 体材料中均匀掺杂和一系列 GaAs/AlAs 多量子阱 (阱宽范围从 30Å 到 200Å) 中 δ -掺杂浅受主杂质铍 (Be) 原子带间跃迁的影响。实验中所用的样品是利用分子束外延技术生长的均匀掺 Be 受主的 GaAs 外延层和一系列在量子阱的中央进行了浅受主 Be 原子 δ -掺杂的 GaAs/AlAs 多量子阱。在 4.2K 的低温下, 测量了上述样品的光致发光谱, 很清楚地观察到了受主束缚激子从基态 $1S_{3/2}(\Gamma_6)$ 到两个激发态 $2S_{3/2}(\Gamma_6)$ 和 $3S_{3/2}(\Gamma_6)$ 的双空穴跃迁。研究发现, 随着量子限制效应的增强, 受主跃迁能量会增加。对量子限制效应调节受主杂质间跃迁能量的研究, 进一步增强了对受主能态可调性的认识, 为太赫兹远红外发光器件或激光器的研发提供了一种新的途径。

关键词: 量子限制效应; GaAs/AlAs 多量子阱; δ 掺杂; 光致发光 (PL) 谱

中图分类号: O472.3; O482.31; TN304.054; TN304.23 **文献标识码:** A

Effect of Quantum Confinement on Acceptor Transition in δ -doped GaAs/AlAs Multiple-quantum Wells

CHU Ning-ning, ZHENG Wei-min, LI Su-mei, SONG Ying-xin, LIU Jing

(School of Space Science and Physics, Shandong University at Weihai, Weihai 264209, China)

Abstract: The effect of quantum confinement on the shallow acceptor transition in δ -doped GaAs/AlAs multiple-quantum wells with a width of 30Å~200Å is studied by using photoluminescence spectra. The samples used in the experiment are the Be δ -doped GaAs epilayers grown by molecular beam epitaxy (MBE) and a series of GaAs multiple-quantum wells in the center of which shallow acceptor Be are δ -doped. The photoluminescence spectra of the samples are measured at a low temperature of 4.2K and the two-hole transition of the acceptor-bound exciton from the ground state, $1S_{3/2}(\Gamma_6)$, to the excited states, $2S_{3/2}(\Gamma_6)$ and $3S_{3/2}(\Gamma_6)$, are observed clearly. It is found that the transition energy of acceptors increases with the enhancement of quantum confinement. The study of the quantum confinement effect used to tune the transition energy of acceptor states has further enhanced the understanding of the acceptor states and has provided a new way to develop terahertz far infrared light emitters or lasers.

Key words: effect of quantum confinement; GaAs/AlAs multiple quantum wells; delta-doped; photoluminescence spectra

收稿日期: 2009-06-08

基金项目: 国家自然科学基金 (60776044); 山东省自然科学基金 (2006ZRA10001)

作者简介: 初宁宁 (1983-), 男, 山东威海人, 硕士研究生, 主要从事半导体低微结构光电性质的研究。E-mail: chuningning07@mails.gucas.ac.cn

1 引言

目前,产生和应用太赫兹辐射是世界范围内的一个研究热点。太赫兹处于红外和微波之间,经常被称为太赫兹 (THz) 辐射。太赫兹波是频率在 $0.1\text{THz} \sim 10\text{THz}$ 范围内的电磁波,在电磁波谱中的位置特殊且具有很多优越性。它的高频短脉冲使其具有高的时间分辨率和空间分辨率;其低能量使其不会对物质结构性产生破坏。因此太赫兹波在医学、生物、天文、气象通信和安检等方面都具有重要应用^[1-3]。准二维 GaAs/AlAs 多量子阱中的浅受主能级谱处于太赫兹范围内,可用来制作远红外探测器、太赫兹固体激光器、超快单电子器件等^[4-8],这是量子限制浅杂质原子带间跃迁一直受到人们重视的原因所在。

在 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 多量子阱中掺入杂质原子,通过调节量子阱对杂质原子的量子限制效应,可以人为地操纵杂质原子的能级结构,其中包括调节能级间隔和能级间的排序,例如,可以使杂质原子的 2p 能级位于 2s 能级之下,成为最低的激发态^[9]。这些对远红外探测器和太赫兹固体激光器技术的研发有着重要作用。

在 GaAs 中,Be 通常是微电子器件中的掺杂受主,原因是它不仅在扩散方面具有相对的稳定性,更重要的是它在体材料中有 28meV 的束缚能^[10],这要比同种情况下的施主束缚能大。被限制在量子阱中的杂质原子的能级不仅是量子阱宽度的函数,也是其在量子阱中掺杂的位置的函数。 δ -掺杂的应用避免了沿量子阱生长方向上杂质原子扩散导致的杂质原子能级扩展。另一方面,由于 GaAs Brillouin 区中心的价带顶具有复杂的四重简并结构,人们对 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 多量子阱中浅受主态性质的研究远没有情况类似的施主的广泛。理论上,考虑到 GaAs 复杂的价带结构,Masslink 等人^[11]首先对 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 多量子阱中 Be 受主的能态进行了计算;实验上,人们通过共振拉曼散射^[12]和远红外吸收^[13]研究了浅受主电子态间的跃迁。之后,Holtz 等人^[14,15]又通过对束缚在受主上的激子复合,间接地研究了受主从基态到同种宇称激发态的跃迁,而且还

对阱宽为 $50\text{\AA} \sim 138\text{\AA}$ 的 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 多量子阱的拉曼散射进行了测量。然而,人们对在阱中心有 Be 受主掺杂的 GaAs/AlAs 多量子阱,无论在实验上还是在理论上却研究得极少。更有意义的是, GaAs/AlAs 量子阱是 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 量子阱系统对受主态量子限制最强的量子阱,即,通过改变量子效应可以使受主能级间的跃迁能量有一个更宽的调节范围。我们在 4.2K 低温下对一系列在阱中有 Be 受主 δ -掺杂的 GaAs/AlAs 多量子阱和一个单层均匀掺杂受主 Be 的 GaAs 外延层进行了光致发光光谱测量。通过观察受主束缚激子的双空穴跃迁 (THT),对浅受主能态间的跃迁进行了研究。

2 实验与讨论

实验测量中所用的样品是通过分子束外延 (MBE) 制备技术生长在半绝缘 (100)GaAs 衬底上的 GaAs/AlAs 多量子阱,并且在阱的中央 δ -掺杂了浅受主杂质原子 Be。样品的每一层都是在精确配比条件下利用低温生长技术生长的,这样能够确保得到高质量的光学材料^[16]。在这些条件下,量子阱结构得到了生长,而且其量子阱界面处无间断,因而 Be 原子 δ 掺杂层的扩散可以忽略。在生长多量子阱之前,先生长了一层厚度为 $3000\text{\AA}$ 的 GaAs 缓冲层,每一个量子阱结构包含一层 $50\text{\AA}$ 宽的 AlAs 势垒层和一层 GaAs 量子阱层,并且在阱层中央进行了 Be 受主原子的 δ 掺杂。每个样品的掺杂剂量和主要特征可见表 1。

利用 Renishaw Raman 影像显微光谱仪,在液氮的温度下分别测量了表 1 所列样品的光致发光光谱。样品置于由液氮循环变温的杜瓦中,用 Ar⁺ 激光器 (波长为 514.5nm) 作为光致发光光谱的激发光源。激光束被聚焦到样品上,再从样品上反射回来,然后再被收集后进入光谱分析仪。激光束对样品的激发功率为 5mW 。

图 1 给出了在 4.2K 低温下样品 F 的光致发光光谱。样品 F 是在 GaAs 体材料中均匀掺 Be 受主的一层外延单层。这里,该样品被用作一个可作比较的参考样品:即当量子阱宽度为无限大

表 1 实验所用样品的结构特征

样品	周期	量子阱宽度 (Å)	掺杂浓度 (cm^{-2})	生长温度 ($^{\circ}\text{C}$)
A	400	30	2×10^{10}	550
B	200	100	5×10^{10}	550
C	50	150	2.5×10^{12}	540
D	40	200	2.5×10^{12}	540
Ea	100	200	5×10^{10}	550
F	5 μm 厚的外延单层 (GaAs Be)		2×10^{16}	550

时, 对 Be 受主无量子限制效应情形。从图 1 中可以清楚地看到, 818.61nm 和 830nm 波长附近各有一个峰台结构, 而且峰台顶部又有些尖峰。高能端的这个峰台是由自由激子和束缚激子的复合发光形成的。峰台上 817.77nm 处的尖峰是由重自由激子 ($X_{CB2-HH1}$) $n=2$ 的态的复合发光产生的, 因为它很少被杂质散射。峰台上 819.78nm 处的尖峰归因于束缚到中性 Be 受主上激子的复合辐射 (Be^0X)。在 $X_{CB2-HH1}$ 和 Be^0X 两尖峰之间有一个宽峰, 它由两个未能分辨的自由激子 $X_{CB1-HH1}$ 复合发光峰和施主束缚激子 D^0X 复合发光峰组成。除此之外, 在 Be^0X 峰的低能边上还有一个发光峰, 常被称为发光 g 线, 它来源于缺陷导致的束缚激子复合辐射^[17]。位于 830nm 波长附近低能端的峰台结构是由施主-受主对 (DAPs) 的复合和自由到束缚的跃迁 (eBe^0) 发光所致。所谓自由到束缚的跃迁 (eBe^0) 是指多量子阱导带中处于 $n=1$ 量子化能级上的电子与束缚在 Be 受主上的空穴的复合。在由 DAPs 和 eBe^0 所形成的峰台上, 可以清楚地看到还叠加着一个标有 THT 的弱峰, 它出现的物理机制被认为是受主束缚激子的双空穴跃迁。对一个束缚着激子的中性受主来讲, 当被束缚的激子发生复合的时候, 存在着这样的一种可能性: 束缚激子复合发出的能量一部分被束缚于受主的空穴吸收, 并传给受主, 致使受主从基态变为激发态。因此, Be^0X 与 THT 两峰之间的能量间隔就对应着该样品中受主从基态 $1S_{3/2}(\Gamma_8)$ 跃迁到激发态 $2S_{3/2}(\Gamma_8)$ 所需要的能量。因此, 对于 GaAs 体材料均匀掺杂 Be 受主的这个 F 样品, 我们在实验中得到的受主从基态 $1S_{3/2}(\Gamma_8)$ 跃迁到激发

态 $2S_{3/2}(\Gamma_8)$ 所需要的能量为 19.9meV, 这和文献 [18] 中曾经报道的结果是一致的。

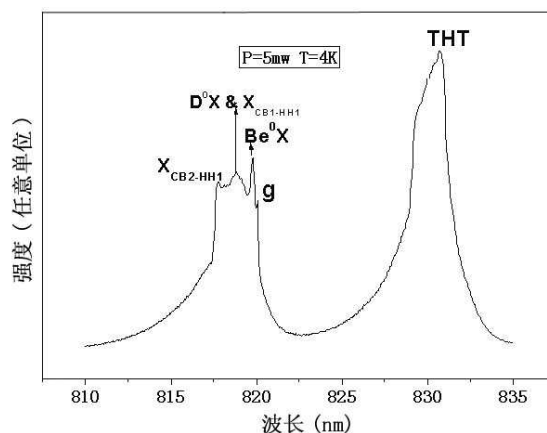


图 1 在 4.2K 温度下, 样品 F (均匀掺杂 Be 受主 GaAs 外延层) 的光致发光谱

当 Be 受主被从 GaAs 体材料中引入到 GaAs/AlAs 多量子阱中时, 由于多量子阱材料不具有体材料的平移对称性, 因此多量子阱样品结构的对称性相对于体材料而言从 T_d 点群减少到了 D_{2d} 群。处于多量子阱中的 Be 受主, 在量子限制效应的作用下, 其价带顶在 Γ 点处的二重简并被解除。因此, 中性受主原子 Be 的基态 $1S_{3/2}(\Gamma_8)$ 被劈裂成 $1S_{3/2}(\Gamma_6)$ 和 $1S_{3/2}(\Gamma_7)$ 两个分立的能态^[13]。图 2 展示了在 4.2K 低温下, 量子阱宽为 200Å 的样品 D 的光致发光谱。从图中可以清楚地看到它有四个明显的发光峰, 最强的峰是由束缚于中性受主上的束缚激子 (Be^0X) 复合产生的, 该峰是一个标有 A、B 的双峰结构, A、B 峰之间的能级间隔为 1.3meV, 而文献 [19] 中介绍的是 1.7meV。B 峰是由 Be 受主束缚激子的一个激发态产生的, 然而随着量子阱宽的减小,

Be^0X 峰的双峰结构变得难以分辨。 Be^0X 峰的高能边是重自由激子峰 $X_{\text{CB1-LH1}}$, 而且在 4.2K 温度下 Be^0X 和 $X_{\text{CB1-LH1}}$ 的发光强度之比为 6.8, 并随着量子阱宽度的减小而减小。在 Be^0X 的低能端, 除了两个较强的峰分别位于 823.74nm (eBe^0) 和 830.91nm (P_2) 处之外, 它们之间的 825.64nm 处还存在一个较弱的肩峰 P_1 , 因为 eBe^0 峰的两侧是不对称的。位于 823.74nm 处的 eBe^0 发光峰归因于自由到束缚的跃迁发光 (eBe^0), 而 P_1 和 P_2 峰分别对应于量子阱中 Be 受主束缚激子的两个空穴跃迁 (THT), 即 $1\text{S}_{3/2}(\Gamma_6) \rightarrow 2\text{S}_{3/2}(\Gamma_6)$ 和 $1\text{S}_{3/2}(\Gamma_6) \rightarrow 3\text{S}_{3/2}(\Gamma_6)$ 。

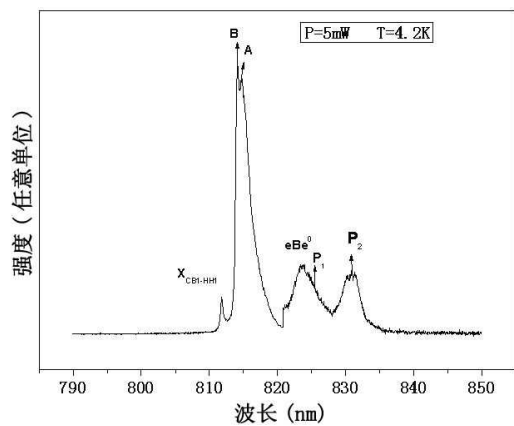


图 2 样品 D(量子阱宽为 20nm) 的光致发光谱

图 3 给出了 4.2K 温度下样品 A 的光致发光谱。样品 A 的量子阱宽度为 30Å, 它代表着 GaAs/AlAs 多量子阱对阱中央掺杂 Be 受主量子限制效应最强的情况。从图中可以清楚地观察到轻自由激子峰 $X_{\text{CB1-LH1}}$ 、重自由激子峰 $X_{\text{CB1-HH1}}$ 和两个空穴跃迁峰 P_1 和 P_2 , 但与图 2 相比, 图 3 有三个明显的特征: (1) 不能清楚地分辨出束缚激子峰 Be^0X 。它位于非对称自由激子峰的低能端。通过激发光谱实验测量, 我们得知它的位置在 706.35nm 处。(2) Be^0X 峰的发光强度很弱。这是因为随着量子阱宽度的变窄, 自由激子的寿命会减少, 而不是由于较低的掺杂原子浓度所致, 因为样品 B 与样品 A 具有同样的受主掺杂剂量, 所以才能清楚地观测到 Be^0X 峰。(3) 两个空穴跃迁峰 P_1 和 P_2 的光致发光强度较弱。因为随着量子阱宽度的变窄, 自由激子的寿

命会变短, 电子空穴对作为自由激子被 Be 受主俘获的几率就减少了^[20]。两个空穴跃迁峰在表 1 的其它样品中也被观察到。在 δ -掺杂 Be 受主的 GaAs/AlAs 多量子阱系统中, 样品 A 是能观测到双空穴跃迁的最窄的量子阱样品。

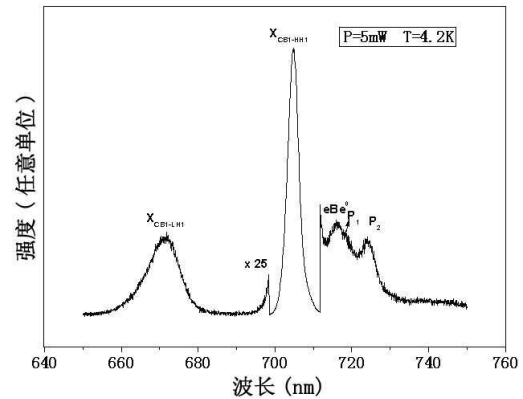


图 3 样品 A(量子阱宽 30Å) 的光致发光谱

图 4 给出了量子限制 Be 受主从 $1\text{S}_{3/2}(\Gamma_6) \rightarrow 2\text{S}_{3/2}(\Gamma_6)$ 和 $1\text{S}_{3/2}(\Gamma_6) \rightarrow 3\text{S}_{3/2}(\Gamma_6)$ 的跃迁能量与量子阱宽度的关系。从图中可以看到, 随着量子阱宽度的减少, Be 受主的跃迁能量单调地增加了。这主要是因为随着量子限制效应的增强, 受主束缚能量得到增加, 使 $1\text{S}_{3/2}(\Gamma_6)$ 基态的位置相对于其他激发态位置变得更低, 致使跃迁能量增加。另外还可以看到, 随着量子阱宽度的增加, Be 受主的跃迁能量逐渐趋向于 GaAs 体材料的情况。

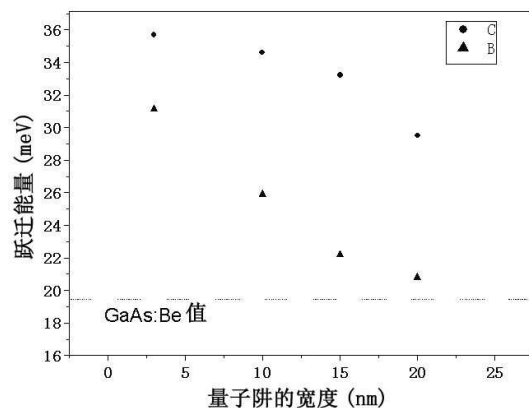


图 4 量子限制在 GaAs/AlAs 多量子阱中心处 Be 受主束缚能与量子阱宽度的变化关系, 实心表示实验数据。

▲ 表示 $2\text{S}_{3/2}(\Gamma_6) \rightarrow 1\text{S}_{3/2}(\Gamma_6)$ 的跃迁

● 表示 $3\text{S}_{3/2}(\Gamma_6) \rightarrow 1\text{S}_{3/2}(\Gamma_6)$ 的跃迁

3 结论

我们通过实验研究了量子限制效应对限制在 GaAs/AlAs 多量子阱中的浅受主跃迁的影响。在 4.2K 的低温下, 测量了一系列 Be 受主 δ - 掺杂 GaAs/AlAs 多量子阱样品和一层均匀掺 Be 的 GaAs 外延层单层的光致发光谱。由于光致发光的无损和高灵敏度, 我们清楚地观察到受主束缚激子从基态 $1S_{3/2}(\Gamma_6)$ 到两个激发态 $2S_{3/2}(\Gamma_6)$ 和 $3S_{3/2}(\Gamma_6)$ 的双空穴跃迁。研究发现, 受主从基态 $1S_{3/2}(\Gamma_6)$ 到激发态 $2S_{3/2}(\Gamma_6)$ 和 $3S_{3/2}(\Gamma_6)$ 的跃迁能量随量子限制效应的增强而增强。双空穴跃迁量子限制效应的发现, 为人们更好地认识受主杂质态能级调制提供了实验基础, 另外对进一步研究相关远红外探测器或激光器也具有十分重要的实际意义。

参考文献

- [1] 胡永生, 陈钱. 太赫兹技术及其应用研究的进展 [J]. **红外**, 2006, **27**(1): 11–15.
- [2] 刘盛纲. 太赫兹科学技术的发展 [J]. **中国基础科学**, 2006, **8**(1): 7–12.
- [3] 戚祖敏. 太赫兹波在军事领域中的应用研究 [J]. **红外**, 2008, **29**(12): 1–4.
- [4] 林伟, 李书平, 康俊勇. InGa_N 量子阱的微观特性 [J]. **发光学报**, 2007, **28**(1): 99–103.
- [5] 王玥, 施卫, 苑进社, 等. MOVPE 生长的 InGa_N/Ga_N 单量子阱的光致发光和光吸收特 [J]. **发光学报**, 2007, **28**(3): 407–411.
- [6] 李梅, 李辉, 王玉霞, 等. GaAlAs / GaAs 非均匀阱宽多量子阱超辐射发光管材料制备及表征 [J]. **发光学报**, 2007, **28**(6): 885–885.
- [7] Rochat M, Faist J, Beck M, et al. Far-infrared ($\lambda = 88\mu\text{m}$) electroluminescence in a quantum cascade structure [J]. *Appl. Phys. Lett*, 1985, **73**(25): 3724–3726.
- [8] Harrison P, Kelsall R W J. Population inversion in optically pumped asymmetric quantum well terahertz lasers [J]. *J. Appl. Phys*, 1985, **81**(11): 7135–7140.
- [9] Harrison P, Stirner T, Bardorf S R, et al. Interface disorder and the inhomogeneous broadening of optical spectra in semiconductor, quantum wells [J]. *Superlatt. Microstruct*, 1993, **13**(4): 431–435.
- [10] Sze S M. Physics of Semiconductor Devices [M]. The Third Edition, New York: John Wiley & Sons Inc., 1981, 20.
- [11] Masselink W T, Chang Yia-Chung. Morkoc H. Acceptor spectra of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ quantum wells in external fields: Electric, magnetic, and uniaxial stress [J]. *Phys. Rev. B*, 1985, **32**(8): 5190–5200.
- [12] Gammom D, Marlin D, Masselink W T, et al. Raman spectra of shallow acceptors in quantum-well structures [J]. *Phys. Rev. B*, 1988, **33**(4): 2919–2922.
- [13] Reeder A A, McCombe B D, Devane G P. Far-infrared study of confinement effects on acceptors in $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum wells [J]. *Phys. Rev. B*, 1988, **38**(6): 4318–4321.
- [14] Holthz P O, Sundaram M, Simes R, et al. Spectroscopic study of the effect of confinement on shallow acceptor states in $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum wells [J]. *Phys. Rev. B*, 1988, **39**(18): 13293–13301.
- [15] Holthz P O, Sundaram M, Merz J L, et al. Spectroscopic study of the effect of confinement on shallow acceptor states in $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum wells [J]. *Phys. Rev. B*, 1988, **40**(18): 12338–12345.
- [16] Missous M. Stoichiometric low-temperature GaAs and AlGaAs: A reflection high-energy electron-diffraction study [J]. *J. Appl. Phys*, 1995, **78**(7): 4467–4471.
- [17] Contour J P, Neu G, Leroux M, et al. An optical characterization of defect levels induced by MBE growth of GaAs [J]. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 1988, **1**(3): 811–815.
- [18] Carcia J C, Beye A C, Contour J P, et al. Reduced carbon acceptor incorporation in GaAs grown by molecular beam epitaxy using dimer arsenic [J]. *Appl. Phys. Lett*, 1988, **52**(19): 1596–1598.
- [19] Holtz P O, Zhao Q X, Monemar B, et al. Electronic structure of a shallow acceptor confined in a $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum well [J]. *Phys. Rev. B*, 1993, **47**(23): 15675–15678.
- [20] Zheng W M, Halsall M P, Harmer P, et al. Acceptor binding energy in δ -doped GaAs/AlAs multiple-quantum wells [J]. *J. Appl. Phys*, 2002, **92**(10): 6039–6042.