

In_xGa_{1-x}As/GaAs 应变量子阱光学性质*

李 锋 张耀辉 江德生

(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)

王佑祥

(中国科学院半导体研究所, 表面界面国家重点实验室, 北京, 100083)

摘要 研究了用分子束外延方法生长在 GaAs(100) 衬底上的 In_xGa_{1-x}As/GaAs ($x = 0.1$) 应变多量子阱样品, 观察了其光荧光谱和光调制反射谱的光谱结构, 讨论了有关基态光跃迁和激发态光跃迁性质。根据实验结果给出了能带偏移比值为 $Q_c = 0.69$ ($Q_v = 1 - Q_c = 0.31$), 并提出有关轻空穴束缚于 GaAs 层而形成 II 类超晶格的重要佐证。

关键词 In_xGa_{1-x}As/GaAs, 应变量子阱, 能带偏移。

引言

应变超晶格及量子阱材料体系的研究极大地拓宽了人们在半导体能带工程领域的视野, 与已有的大量晶格匹配材料体系相比, 应变超晶格及量子阱系统具有更大的可塑性。

GaAs 和 In_xGa_{1-x}As 都是已被广泛应用的半导体材料, 由这两个材料构成的 In_xGa_{1-x}As/GaAs 应变量子阱超晶格系统近年来倍受人们的重视^[1~4], 但作为应变超晶格系统, In_xGa_{1-x}As/GaAs 存在着外延生长、实验观测及理论计算处理上的困难。在确定 In_xGa_{1-x}As/GaAs 能带偏移比值问题上, 虽然一般认为对于较小的 In 组分值 ($x < 0.3$), 导带偏移比值 Q_c 在 0.65~0.75 范围内^[1~5], 但理论计算和实验结果都存在着较大的分歧^[6~8]。同时, 也未能从实验现象上确认晶格应变使轻空穴束缚于 GaAs 层。

本工作采用光荧光 (PL)、光调制反射谱 (PR) 和俄歇能谱方法, 研究了 In_xGa_{1-x}As/GaAs 应变多量子阱系统。对能带偏移比值 Q_c 、PL 光谱和 PR 光谱结构及相应光跃迁特性进行了探讨。

1 样品及实验方法

样品为分子束外延 (MBE) 生长的 In_xGa_{1-x}As/GaAs ($x = 0.1$) 应变多量子阱结

* 国家自然科学基金资助项目

本文 1993 年 10 月 5 日收到, 修改稿 1994 年 6 月 14 日收到

构, 未进行有意的掺杂, 衬底为半绝缘 GaAs (100). 这种多量子阱结构中共有 4 个阱, 即 I、II、III、IV 阈, 其宽度分别为 70、80、120、180 Å, 各阱之间生长厚度为 150 Å 的 GaAs 势垒层, 顶端生长 300 Å 的 GaAs 保护层. MBE 生长过程中考虑了应变临界厚度. 图 1 给出了样品能带结构示意图.

光荧光 (PL) 测量用 He-Ne (5 mW) 激光器作为激发源, 用 J-Y H25 单色仪分光, 探测器为大面积 Si 光电二极管. 光调制反射 (PR) 测量使用 5 mW 的 He-Ne 激光束经斩波后直接照在样品上作为调制光束, 50 W 卤钨灯光经 J-Y H25 单色仪分光后照射在样品同一点上, 其调制反射信号 $\Delta R/R$ 用大面积 Si 光电二极管接收. 测量过程用计算机控制, 信号由 EG&G 5210 锁相放大器放大. 低温测量采用 APD 氮气制冷装置实现.

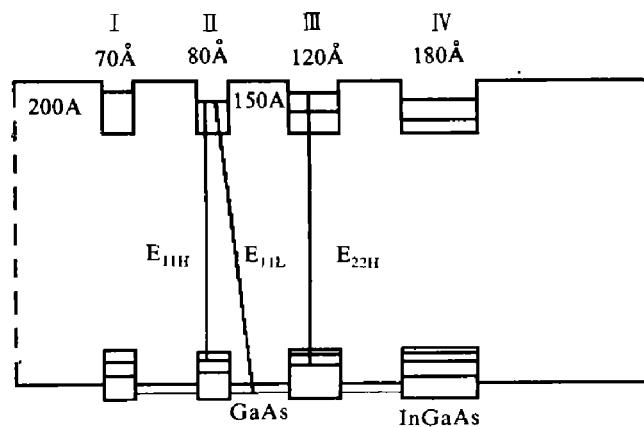


图 1 四量子阱样品能带结构示意图
Fig. 1 Schematic diagram of the energy band structure of the sample with 4 QWs

2 实验结果及讨论

我们用俄歇能谱方法分析 $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ 应变多量子阱样品, 选择样品上多个点进行纵向剥层测量, 结果表明, 样品组分及厚度参数在不同点的均匀性很好. 厚度数据如前所述, 有关 In 组分则仅能给出深度分布, 无法给出精确定量值.

图 2 给出样品在 $T = 10\text{ K}$ 时的光荧光 (PL) 谱和 $T = 300, 160, 77\text{ K}$ 时的光调制反射谱 (PR). 为了便于比较, 将不同温度下的光谱作了横向移动.

对于 $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ 应变量子阱, 由于晶格失配而产生的应力可分解为流体静压力 (各向同性) 和沿生长方向的单轴应力两部份, 前者引起阱层 $In_xGa_{1-x}As$ 的禁带宽度改变 (增加), 后者引起 $In_xGa_{1-x}As$ 中轻、重空穴能带分裂. 正是这种分裂, 可能造成 $In_xGa_{1-x}As$ 中轻空穴的带边位于 GaAs 中轻空穴带边之下, 从而使轻空穴限制于 GaAs 层中, 重空穴限制于 $In_xGa_{1-x}As$ 层中, 即造成轻、重空穴空间上的分离.

我们利用包络函数方法计算了 $In_xGa_{1-x}As$ 中各子能级位置, 考虑了晶格应变导致的 $In_xGa_{1-x}As$ 带隙的增加以及应变造成的 $In_xGa_{1-x}As$ 中轻、重空穴能级的分裂. 当然, 计算中能带偏移比值 Q_c 及 Q_v ($Q_v = 1 - Q_c$) 的取值是举足轻重的, 它可以确定轻空穴究竟是束缚于 $In_xGa_{1-x}As$ 中还是 GaAs 中. 因此, 从实验上确定 Q_c 值是至关重要的.

图 3 给出了由包络函数方法计算出的 4 个阱中的各跃迁能量随 Q_c 变化的理论值曲线 (关于 x 取值将在后文讨论). 其中 E_{11H} 对应于电子基态到重空穴基态的跃迁 $1C \rightarrow 1HH$, E_{11L} 对应于电子基态到轻空穴基态的跃迁 $1C \rightarrow 1LH$, E_{22H} 对应于电子第一激发态到重空穴第一激发态的跃迁 $2C \rightarrow 2HH$.

计算中认为 $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ 应变量子阱在低温或室温下其 E_{11H} 都是激子跃迁, 4

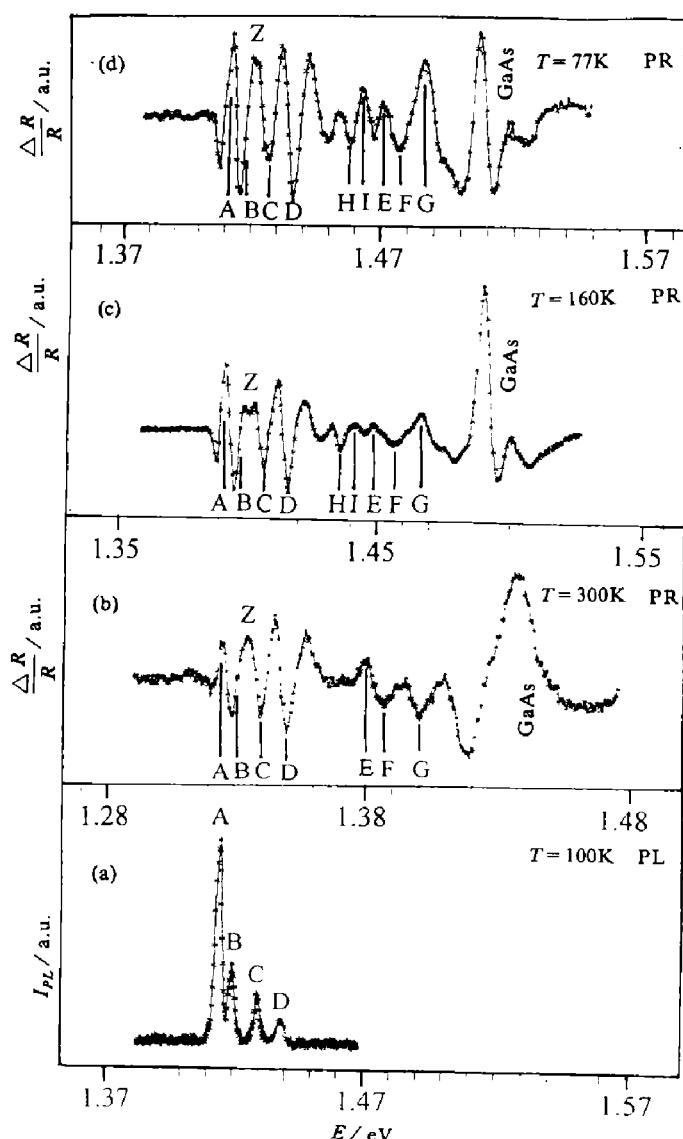


图 2 不同温度下 PL 和 PR 谱
Fig. 2 PL and PR spectra at different temperatures

下面首先通过对 PL 谱和 PR 谱的分析指派各阱中 E_{11H} 跃迁，并与用包络函数计算阱中子能级位置得到的 E_{11H} 理论数据相比较，从而反推出各阱中 In 组分值 x 。考虑到一般认为 Q_c 在 0.65~0.75 之间，计算时先假定 $Q_c = 0.7$ 。

图 2(a) 为 $T = 10\text{ K}$ 的 PL 谱，从中可看到 4 个荧光峰。在我们采用的弱激发条件下，这 4 个峰分别对应于 I、II、III、IV 阵中的 E_{11H} 跃迁。由预计的 $x = 0.1$ ，也可以估计出 10 K 时 4 个阱的 E_{11H} 能量分布于 1.41~1.45 eV。同时，我们注意到荧光峰由低能到高能方向强度依次减弱，这可能是因为：虽然窄阱中 E_{11H} 跃迁几率较宽阱大，但样品中 x 很小，即 InGaAs 阵很浅（约几十 meV）。采用弱激发时，由于各阱之间的载流子隧穿而导致宽阱中 1C 和 1HH 能级上集中了更多的载流子，从而产生较强的 E_{11H} 荧光峰。

图 2(b)、(c)、(d) 分别给出了 3 种温度下的 PR 谱。可以看出 3 个 PR 谱的低能区

个阱都取 8 meV 为激子束缚能^[9]。而对 E_{11L} 和 E_{22H} 跃迁，由于激子束缚能很小，可予忽略。

从图 3 可知，在阱和垒的宽度及 In 组分已确定的情况下，取不同的导带偏移比值 Q_c 得到的 E_{11H} 值相差很小，而相对于轻空穴的跃迁 E_{11L} 则随 Q_c 改变相差很大， E_{22H} 则介于两者之间。

理论上，根据 PL 谱或 PR 谱中的峰位指派，无论从 E_{11H} 、 E_{11L} 或 E_{22H} ，都可以从图 3 确定能带偏移比值 Q_c 和 Q_v 。但事实上，由于 $E_{11H} - Q_c$ 曲线斜率很小，再加上实验上误差，利用 PL 和 PR 谱中 E_{11H} 能量位置来定 Q_c 很容易出错。但由斜率很大的 $E_{11L} - Q_c$ 曲线，根据 PL 和 PR 谱中的 E_{11L} 和 E_{22H} 指派来确定 Q_c 则较可靠。

不过， E_{11H} 峰值能量位置并非无用。正如我们所知，MBE 生长过程中， $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 中 In 组分 x 值总是有一定波动的，不同阱中的 x 值更是存在差别，而且，由俄歇能谱等方法不能准确测定 x 值。 E_{11H} 的值取决于 x 、 Q_c 及阱垒宽度等因素。有利的是，既然 E_{11H} 值随 Q_c 变化很小，且阱垒宽度可准确测定，故可以在相当大的范围内取 Q_c 值而基本保持 E_{11H} 相差不大，这样就能利用 E_{11H} 准确修正 x 值。

中几个强结构相互之间没有明显相对位移和线型变化。另外,由160 K的PR谱可知,图2(b)、(d)中的Z峰实际上是两个结构的交迭,不可能是单独的结构。根据光调制反射谱的典型激子线型拟合^[10],可指派图2(b)、(c)、(d)谱图中A、B、C、D结构分别为IV、III、II、I阱的 E_{11H} 跃迁,而它们的能量间隔与图2(a)的荧光峰A、B、C、D之间的能量间隔完全相同。这充分说明我们对4个阱中 E_{11H} 跃迁在PL和PR中的指派是正确的。

根据上面对 E_{11H} 跃迁在PL和PR谱中的指派及俄歇测量得到的各阱宽参数,表1给出各阱的In组分值 x 。

表1 4种 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 应变多量子阱结构中 x 值的修正

Table 1 The correction of x values for four $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ strained QW structures

阱号及阱宽	I (70Å)	II (80Å)	III (120Å)	IV (180Å)
PR中指派 E_{11H} (eV)($T=300\text{ K}$)	1.349	1.339	1.330	1.324
按 $x=0.1$ 计算出的 E_{11H} (eV) $Q_c=0.7$	1.357	1.352	1.338	1.329
修正后 x 值	0.110	0.115	0.109	0.106

我们认为,由于PR谱本身的线型特点,指派和拟合会有一些误差。同时,仅由PL谱来确定 E_{11H} 也不妥,因为斯托克斯移动的存在,PL谱中 E_{11H} 绝对能量位置可能不准。但我们认为PL谱中各 E_{11H} 的能量差与PR谱中各 E_{11H} 的能量差基本相同,即可以“对齐”,这就使得我们可通过PR和PL的对比来准确确定 E_{11H} ,进而修正各阱的 x 值。

下面我们指派室温PR谱中的其它光谱结构。由图2(b),可以在1.37~1.41 eV范围看到3个结构。1.43 eV附近的2个峰是体GaAs信号,其低能侧的3个结构E、F、G中的E、F对应于半宽不同的2个结构。如果我们拟合指派:E(1.380 eV)为II阱($1\text{C} \rightarrow 1\text{LH}$) E_{11L} 跃迁,F(1.386 eV)为I阱($1\text{C} \rightarrow 1\text{LH}$) E_{11L} 跃迁,G(1.401 eV)为III阱($1\text{C} \rightarrow 2\text{HH}$) E_{22H} 跃迁。则由图3,当取 $Q_c=0.69$ 时,由曲线查出的包络函数计算值与上述E、F、G结构能量完全吻合。事实上,这样指派从能带结构上来看也是合理的。如果 $Q_c=0.69$ 是正确的,理论计算表明轻空穴将被限制在GaAs中, E_{11L} 属于II类超晶格跃迁,InGaAs层成为轻空穴的势垒。对于象III和IV阱的宽阱,其 E_{11L} 跃迁要求轻空穴穿过厚的势垒,故信号肯定比I和II阱弱,或者根本观察不到。当然,在低温下,由于阱中子能级展宽减小,对应于 E_{11L} 跃迁的信号增强,则可能观察到这两个宽阱中的 E_{11L} 跃迁信号^[11]。

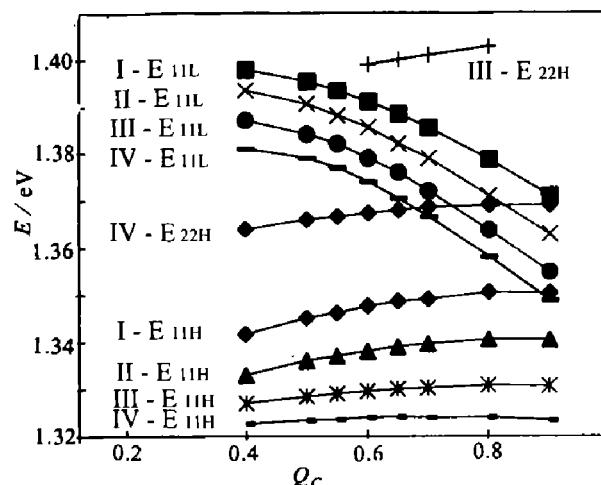


图3 各阱中 E_{11H} 、 E_{11L} 和 E_{22H} 对应于不同 Q_c 的理论计算结果

Fig. 3 The theoretical calculation results of E_{11H} , E_{11L} and E_{22H} in each well as a function of Q_c

由图 1 可知, 较宽的Ⅲ和Ⅳ阱中有电子和重空穴的激发态, 故有可能出现 E_{22H} 跃迁。其中较窄的Ⅲ阱中 E_{22H} 跃迁几率更大^[12], 这就是在图 2(b) 中没有观察到Ⅳ阱 E_{22H} 信号的原因。同 E_{11L} 情况一样, 在低温下, 由于子能级展宽变小, 对应于 E_{22H} 跃迁的信号增强, 则可能观察到Ⅳ阱中的 E_{22H} 跃迁。

由上述讨论可知, 对于 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ ($x=0.1$) 应变量子阱系统, 取能带偏移比值 $Q_c=0.69$ 、 $Q_v=0.31$ 是适当的。

有了正确的 Q_c 值, 对于讨论 160 K 和 77 K 的 PR 光谱结构并进一步讨论其光跃迁特性带来很大方便。取 $Q_c=0.69$, 根据包络函数计算, 结合线型拟合, 我们对图 2(c)、(d) PR 谱指派如表 2 所示, 其中右边二列分别为 160 K 和 77 K 时理论计算值。

表 2 160 K 和 77 K 的 PR 谱结构的指派
Table 2 The assignment to PR features at 160 K and 77 K

结构	指派	跃迁能量	
		$T=160\text{ K}$	$T=77\text{ K}$
A	IV阱 E_{11H}	1.392eV	1.412eV
B	III阱 E_{11H}	1.399eV	1.419eV
C	II阱 E_{11H}	1.408eV	1.429eV
D	I阱 E_{11H}	1.417eV	1.438eV
H	IV阱 E_{22H}	1.435eV	1.457eV
I	III阱 E_{11L}	1.440eV	1.460eV
E	II阱 E_{11L}	1.447eV	1.467eV
F	I阱 E_{11L}	1.454eV	1.473eV
G	III阱 E_{22H}	1.467eV	1.488eV

对照图 2(c)、(d), 可以看出计算值与指派光谱结构的能量仅相差 2~3 meV, 在测量及计算允许误差之内。这说明指派是合理的, 同时也验证了取 $Q_c=0.69$ 是正确的。以上指派 H 和 I 时, 我们的分析如下: 首先, 从 160 K 到 77 K 的变化可以看出 H 和 I 对应于 2 个不同的 PR 信号结构; 同时, 当温度从 300 K 降至 160 K 时, 在图 2(c) 中观察到 H 和 I, 但 H 结构的强度远大于 I。由于 E_{11L} 跃迁属于 II 类超晶格跃迁, 故当指派 I 为阱 III 中 E_{11L} 跃迁的同时, 鉴于阱 IV 宽度比 III 宽大得多, 不应指派 H 为 IV 阵中 E_{11L} 跃迁。

从图 2 可知, 当温度从室温降至 77 K 时, 观察到的对应于 E_{11L} 跃迁的光谱信号从 2 个变成 3 个 (分别属于 I、II、III 阵)。当温度从室温降至 160 K 和 77 K 时, 观察到 E_{22H} 跃迁信号从 1 个 (G) 变成 2 个 (H 和 G, 分别属于 IV 和 III 阵)。我们知道, 对于象 GaAs/GaAlAs 这种晶格匹配量子阱材料, 重、轻空穴没有分裂且都限制于 GaAs 阵层中, 由于电子和空穴基态较之激发态展宽要小, 并由于基态电子和空穴有着更强的激子效应, 在 PR 谱上, E_{11H} 和 E_{11L} 跃迁会形成比 E_{22H} 强且尖锐的光谱结构。而我们对 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 应变多量子阱 PR 谱中观察到的现象则有所不同, 在室温图 2(b) 谱中未观察到 III 和 IV 阵的 E_{11L} 跃迁, 却看到了 III 阵的 E_{22H} 跃迁, 而且, III 和 IV 阵的 E_{22H} 较 E_{11L} 信号强得多。这也就从一个方面证实了在 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 应变系统中, 轻空穴限制于 GaAs 势垒层, 即 E_{11L} 实际上为实空间中的间接跃迁。如果 InGaAs 层较

厚, 则 E_{11L} 强度将很低, 甚至可能观察不到。正如图 2 所示, IV 阵中的 E_{11L} 跃迁在不同温度的 PR 谱中始终未观察到。

3 结论

本工作采用俄歇能谱方法则量了在 GaAs(100) 衬底上 MBE 生长的 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ ($x = 0.1$) 应变多量子阱结构, 给出了阱宽参数和 In 组分的纵向分布, 结果表明样品平面上各点的阱宽及 In 组分均匀性很好。

对 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 应变多量子阱样品进行了低温光荧光谱及变温 ($T = 300, 160, 77\text{ K}$) 光调制反射谱测量。在 PL 谱中观察到了对应于 4 个阱的 $1\text{C} \rightarrow 1\text{HH}$ 的 E_{11H} 荧光峰, 其半宽度小于 5 meV, 且有较强的荧光强度。在 3 种不同温度的 PR 谱中, 观察到了对应不同阱的 E_{11H} 、 E_{11L} 、 E_{22H} 跃迁信号。我们分析了 E_{11H} 、 E_{11L} 、 E_{22H} 与能带偏移比值 Q_c 之间的关系, 并通过对 PR 谱 E_{11H} 能量分析, 对样品 In 组分进行了修正。利用 $E_{11L}-Q_c$ 和 $E_{22H}-Q_c$ 曲线, 对能带偏移比值的取值进行了讨论, 并给出最佳值 $Q_c = 0.69$ 和 $Q_v = 0.31$ 。

我们根据变温 PR 谱中 E_{11L} 和 E_{22H} 跃迁光谱结构特征的观察和比较, 对应变 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 体系能带结构中, 由于应变造成轻重空穴分裂、且轻空穴限制于 GaAs 中提出了有力的佐证。

参考文献

- 1 Marzin J Y, et al. *Phys. Rev.*, 1985, **B31**:8298
- 2 Voisin P, et al. *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **48**:1476
- 3 Pan S H, et al. *Phys. Rev.*, 1988, **B38**:3375
- 4 Hua B Y, et al. *Appl. Phys. Lett.*, 1988, **53**:1062
- 5 Ji G, et al. *J. Appl. Phys.*, 1987, **62**:3366
- 6 Menedez J, et al. *Phys. Rev.*, 1987, **B36**:8165
- 7 Anderson T G, et al. *Phys. Rev.*, 1988, **B37**:4032
- 8 Arent D J, et al. *J. Appl. Phys.*, 1989, **66**(4):1739
- 9 Hou H Q, et al. *Phys. Rev.*, 1990, **B42**:1284
- 10 江德生, 等. *红外研究*, 1989, **8**(1):15
- 11 潘士宏, 等. *半导体学报*, 1992, **13**(6):343

OPTICAL PROPERTIES OF $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ STRAINED LAYER QUANTUM-WELLS*

Li Feng Zhang Yaohui Jiang Desheng

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

Wang Youxiang

(*Laboratory for Surface Physics, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

Abstract Structures have been observed in the photoluminescence (PL) and the photoreflectance (PR) spectra of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ ($x = 0.1$) strained-layer multiple quantum-wells (QWs) grown by molecular-beam epitaxy on GaAs (100)-oriented substrate. The properties of the ground state transitions and the excited state transitions are discussed. The band offset ratio $Q_c = 0.69$ ($Q_v = 1 - Q_c = 0.31$) is given based on the analysis of PL, PR experimental results. An important evidence, which indicates that the light holes are confined in the GaAs layer forming a type II superlattice, is provided.

Key words $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$, strained-layered quantum well, band offset.

*The project supported by the National Natural Science Foundation of China