

# GaAs/AlGaAs 非对称耦合双量子阱界面 混合效应光荧光光谱研究\*

缪中林<sup>1,2</sup> 陆卫<sup>1,2</sup> 陈平平<sup>1,2</sup> 李志锋<sup>1,2</sup> 刘平<sup>1</sup>  
袁先漳<sup>1</sup> 蔡炜颖<sup>1</sup> 徐文兰<sup>1</sup> 沈学础<sup>1</sup> 陈昌明<sup>2</sup>  
朱德彰<sup>2</sup> 胡均<sup>2</sup> 李明乾<sup>2</sup>

<sup>1</sup>中国科学院上海技术物理研究所, 红外物理国家重点实验室, 上海, 200083;

<sup>2</sup>中国科学院上海原子核研究所, 核分析技术开放实验室, 上海, 201800

**摘要** 用分子束外延系统生长了 GaAs/AlGaAs 非对称耦合双量子阱(ACDQW), 用组合注入的方法, 在同一块衬底上获得了不同注入离子和不同注入剂量的耦合量子阱单元, 没有经过快速热退火过程, 在常温下测量了不同单元的显微光荧光光谱, 发现子带间跃迁能量最大变化范围接近 100meV, 组合注入所导致的能量移动要大于单独注入导致的能量移动。

**关键词** 非对称耦合双量子阱, 组合注入, 界面混合, 光荧光谱。

## STUDY ON THE INTERMIXING OF GaAs/AlGaAs ASYMMETRICAL COUPLING DOUBLE QUANTUM WELL WITH PHOTOLUMINESCENCE SPECTRA\*

MIAO Zhong-Lin<sup>1,2</sup> LU Wei<sup>1,2</sup> CHEN Ping-Ping<sup>1,2</sup> LI Zhi-Feng<sup>1,2</sup> LIU Ping<sup>1</sup>  
YUAN Xiang-Zhang<sup>1</sup> CAI Wei-Ying<sup>1</sup> XU Wen-Lan<sup>1</sup> SHEN Xue-Chu<sup>1</sup>  
CHEN Chang-Ming<sup>2</sup> ZHU De-Zhang<sup>2</sup> HU Jun<sup>2</sup> LI Ming-Qian<sup>2</sup>

<sup>1</sup> National Laboratory of Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics,  
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China;

<sup>2</sup> Laboratory of Nuclear Analysis Techniques, Shanghai Institute of Nuclear Research,  
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

**Abstract** GaAs/AlGaAs asymmetrical coupling double quantum wells (ACDQW) were grown with MBE with the combinative implantation method, and several areas of coupling quantum well with different implantation ion of As<sup>+</sup> and H<sup>+</sup> and different ion doses in single wafer were obtained. Without rapid thermal annealing procedure, maximum difference of transition energy of intersubbands of 100meV was found from the photoluminescence spectra measured at room temperature. During the implantation process, the energy shift caused by combinative implantation was found to be larger than that caused by ion implantation individually.

**Key words** asymmetrical coupling double quantum well (ACDQW), combinative implantation, intermixing, photoluminescence (PL) spectrum.

### 引言

长期以来, 离子注入作为促进异质结界面混合的一种有效手段, 可以用来取得新的器件结

构<sup>[1~3,12]</sup>和研究有趣的物理过程<sup>[4~6,10]</sup>. 主要注入离子种类有 Si, O, Be, Mg, Se, As 和 H 等<sup>[7~9]</sup>. 在我们的实验中选取 As 和 H 作为注入离子源, As 在 GaAs/AlGaAs 耦合量子阱中不会成为具有电学活

\* 国家自然科学基金(编号 69676014)和国家重点基础研究基金资助项目

稿件收到日期 2000-06-19, 修改稿收到日期 2000-07-13

\* The project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 69676014) and by the Foundation of State Key Basic Research

Received 2000-06-19, revised 2000-07-13

性的掺杂剂<sup>[10-11,17]</sup>而H的原子半径小,能够快速扩散到衬底内部,残留在量子阱层的很少,引入的缺陷也比较少<sup>[12]</sup>.非对称耦合双量子阱(ACDQW)近年来引起人们浓厚研究兴趣,当两个量子阱之间的势垒层厚度接近或小于德布罗意波长的时候,由于电子波函数的耦合会产生一些有趣的特性.比如,在非对称量子阱中可以观察到单个对称量子阱中禁戒的子能带间跃迁<sup>[13]</sup>.

采用组合注入方法<sup>[14]</sup>,可以在同一块样品上同时得到不同注入剂量、不同注入离子及其组合注入的区域,这大大简化了注入过程和确保了各区域工艺条件的可比性,便于从中筛选出最佳注入离子和注入剂量.采用组合注入方法,不经过通常的快速热退火过程,我们在同一块样品上得到子带间跃迁能量最大变化接近100meV的量子阱发光区域.

## 1 实验

本实验所用的样品是在Riber 32型分子束外延(MBE)系统中生长的.为了减小应变和缺陷,GaAs(100)衬底脱氧后生长了500nm的缓冲层,再生长50nm  $Al_{0.53}Ga_{0.47}As$  势垒层,然后依次为3nm GaAs 势阱层,2nm AlAs 势垒,7nm GaAs 势阱,50nm  $Al_{0.53}Ga_{0.47}As$  势垒层,最后是20nm GaAs 表面保护层.外延生长在量子阱和垒的界面处都中断了10s,以使界面恢复得更平整.外延生长速率和Al组分由RHEED振荡测定.样品结构如图1所示.

典型的对界面进行混合的方法是先离子注入,然后对样品进行快速热退火.而我们在离子注入后不经过热退火,研究在离子注入过程中,样品的自加热过程导致界面混合所引起的耦合量子阱能带结构

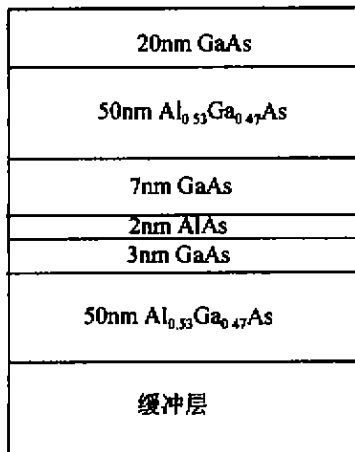


图1 样品结构

Fig. 1 Sample structure

的变化.选取As和H作为注入元素,室温下用2块厚度为0.5mm的铝制掩模板控制 $As^-$ 和 $H^+$ 对样品不同区域的注入.一块掩模板上分布直径为2mm、中间距为3mm的小孔列阵,在注入过程中,这块掩模板与样品接触并且保持不动.另外一块无图案的掩模板在注入过程中顺序移动使得固定掩模板的小孔逐行或逐列顺序暴露在离子束中,以获得不同注入剂量和组分的单元.在实际注入过程中,先逐行顺序注入 $As^-$ ,得到4种 $As^-$ 注入剂量分别为 $5 \times 10^9$ 、 $5 \times 10^{11}$ 、 $5 \times 10^{13}$ 和 $5 \times 10^{15} cm^{-2}$ ,注入剂量根据时间来控制,每列分别标为 $As_1$ 、 $As_2$ 、 $As_3$ 、 $As_4$ ,注入能量为80KeV.然后再逐行注入 $H^+$ ,得到 $H^+$ 的注入剂量为 $5 \times 10^9$ 、 $5 \times 10^{11}$ 、 $5 \times 10^{13}$ 和 $5 \times 10^{15}$ ,每行分别标为 $H_1$ 、 $H_2$ 、 $H_3$ 、 $H_4$ ,注入能量为40KeV.这样标为 $As_i$ 的一行没有 $H^+$ 只有 $As^+$ 注入,注入剂量分别为 $0.5 \times 10^9$ 、 $5 \times 10^{11}$ 、 $5 \times 10^{13}$ 和 $5 \times 10^{15} cm^{-2}$ ,标为 $H_i$ 的一列只有 $H^+$ 而没有 $As^+$ 注入,注入剂量分别为 $0.5 \times 10^9$ 、 $5 \times 10^{11}$ 、 $5 \times 10^{13}$ 和 $5 \times 10^{15} cm^{-2}$ .而处于掩模板对角线区域为两种离子混合注入的区域,如图2所示.由于注入而引起的自加热温度大约为100℃.

光致荧光谱是用Dilor-INFINTY显微拉曼/荧光光谱仪在室温条件下测量的,激发光源为氩离子激光器的514.5nm线.采用了100倍的显微物镜,使空间分辨率足以达到各注入区域无相互干扰的逐个区域的扫描.

## 2 结果及讨论

图3为样品没有注入质子之前的光荧光(PL)

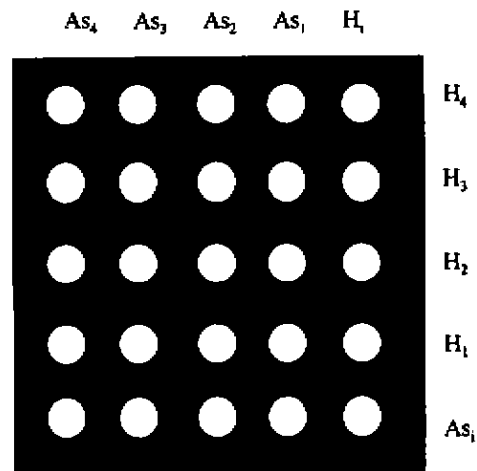


图2 组合注入以后得到不同掺杂剂量和组分的单元示意图

Fig. 2 Area diagram after combinative implantation with different ion doses and different ions composition

谱,纵坐标  $I$  为光荧光强度,横坐标  $E_p$  为光子能量. 拟合 PL 谱,得到 3 个跃迁峰能量位置分别为 1.499、1.518 和 1.605eV.  $Al_{0.53}Ga_{0.47}As$  是间接能带结构,最低的导带是 X 能谷,距离 GaAs 导带底 0.386eV,而第一激发  $\Gamma$  电子子带距 GaAs 导带底 0.217eV,小于 X 能谷势垒. 在我们研究中为简单起见,忽略了  $\Gamma$ -X 界面混合效应对于电子之能级的影响,对于组分  $x=0.53$  的 GaAs/ $Al_xGa_{1-x}As$  体系仍然采用直接带隙( $\Gamma$  能谷)为势垒<sup>[15]</sup>,导带带阶取为 0.6,势阱和势垒的宽度取生长过程中 RHEED 监控得到的值. 在不作任何参数调节情况下采用有效质量近似理论可算得第一电子子带到第一重空穴子带的跃迁峰能量(e1-hh1)为 1.498eV,第一电子子带到第一轻空穴子带的跃迁峰能量为(e1-lh1) 1.527eV,同样第二电子子带到第二重空穴子带的跃迁(e2-hh2)为 1.639eV. 所以 PL 谱中 3 个跃迁峰 1.499、1.518 和 1.605eV 分别指认为 e1-hh1、e1-lh1 和 e2-hh2 的跃迁. 所得的实验值与有效质量模型预计的理论值较吻合.

注入质子以后引起跃迁峰位移动如图 4 所示. 图中 1.42eV 处为 GaAs 的基本带间跃迁. 从图中可以看到,随着注入剂量的增加,子带间跃迁明显向高能方向移动,并且峰形逐渐展宽. 从(e)中看到,当注入剂量达到  $5 \times 10^{15} \text{cm}^{-2}$  时,复合发光峰淬灭,对图 4 的 PL 谱进行拟合,得到注入不同剂量的质子以后的子带间跃迁能量值,图 5 为子带间跃迁能量变化曲线,其中纵坐标  $E$  为子带间跃迁能量,横坐标  $N$  为注入离子剂量,与基态间跃迁相关的变化斜率要稍大于与激发态间跃迁相关的变化斜率,说明注入人对基态间跃迁影响比较大. 图 6 为弛豫因子变化曲

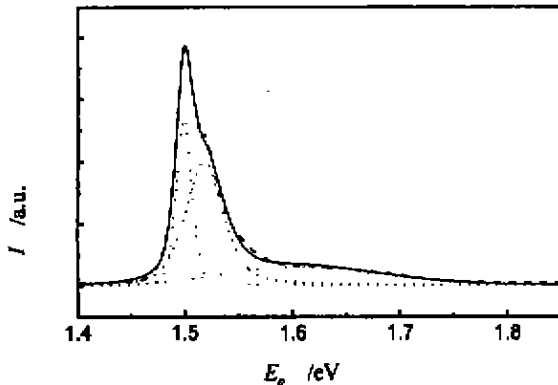


图 3 没有注入之前耦合量子阱的光荧光谱,虚线为实验谱线,实线为拟合曲线,圆点线为 3 个拟合峰

Fig. 3 PL of as-grown sample (dashed line: experimental, solid line: fitting line, dots: fitting peaks)

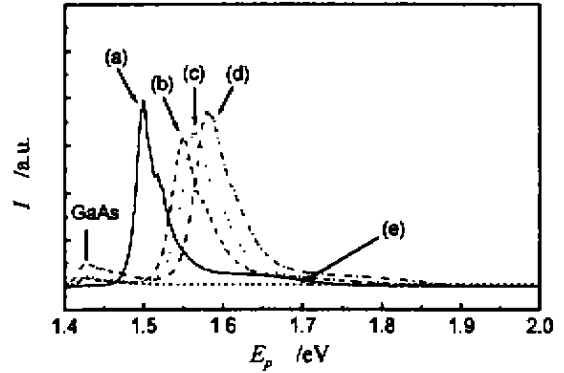


图 4 注入不同剂量质子的 PL 谱 (a)无,(b)  $5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$ , (c)  $5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ , (d)  $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ , (e)  $5 \times 10^{15} \text{cm}^{-2}$

Fig. 4 PL spectra with proton implantation under different doses (a) none, (b)  $5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$ , (c)  $5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ , (d)  $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ , (e)  $5 \times 10^{15} \text{cm}^{-2}$

线,说明 e2-hh2 跃迁峰的弛豫因子随注入能量的增加明显增大. 其中一个重要原因是因为注入而引起的缺陷,导致量子阱中电子能级散射增强,所以弛豫因子增加,峰形变宽. 但我们也注意到在 e2-hh2 跃迁能量附近存在很多由宇称决定的禁戒或跃迁几率很小的能态,它们可能在缺陷增多后有一定的激活,这可能是相应的 e2-hh2 峰展宽较快的一个原因. 随着注入剂量增加,由于注入而引起的缺陷使参与发光的自由激子的数量减少,注入剂量越大,这种效应越明显,所以在光荧光谱中可以看到复合发光峰发生淬灭.

图 7 为注入不同剂量  $As^+$  的 PL 谱,图 8 为组合注入  $As^+$  和质子的 PL 谱,可以看到与注入质子相似的峰形展宽和峰位移动,跟注入质子的 PL 谱相比,有比较快的淬灭趋势,这是因为  $As^+$  半径比质

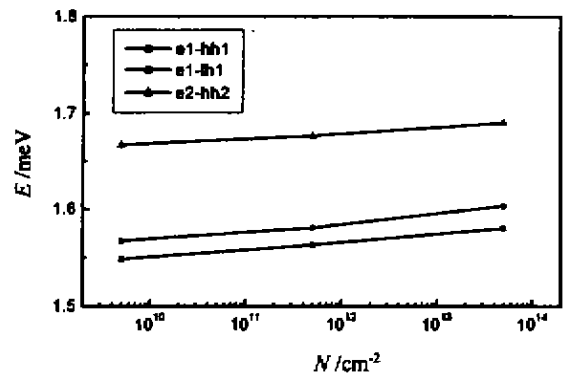


图 5 注入不同剂量质子以后子带间跃迁能量变化曲线

Fig. 5 Intersubbands transition energy vs proton implantation doses

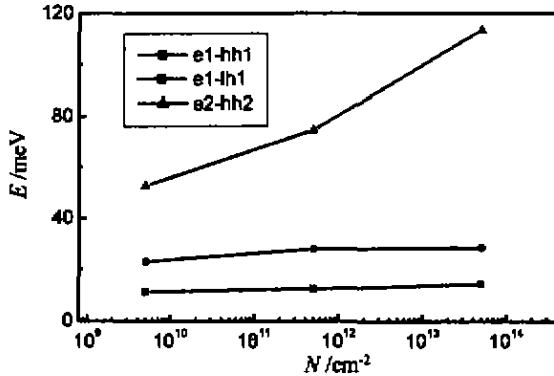


图6 注入不同剂量质子以后 PL 谱子带间跃迁峰弛豫因子变化曲线

Fig. 6 Intersubbands transition peaks relaxation factor of PL spectrum vs implantation doses

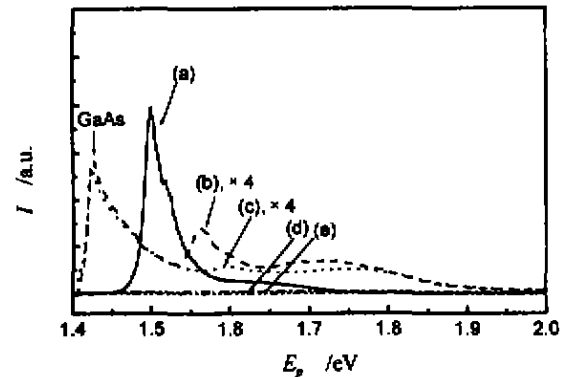


图8 组合注入不同剂量 As⁺ (如图4) 和质子以后的 PL 谱

Fig. 8 PL spectra with combinative As⁺ and proton implantation under different doses. As⁺ and proton doses are, respectively, as in Fig. 4

子半径大,在相同剂量的注入过程中带来比较多的缺陷,对界面的破坏较大<sup>[12]</sup>,使参与发光的自由激子的数量急剧减少,所以有比较快的淬灭趋势.从图8可以看到,组合注入导致的可以观测到的能量移动要大于任何单独注入的移动,接近10meV,这可以解释为组合注入的离子注入剂量总要大于单独注入时的剂量.图9为组合注入 As⁻ 和质子以及单独注入 As⁺ 的 PL 谱,注入剂量为  $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ ,实线为组合的 PL 谱,虚线为单独注入 As⁺ 的谱线,可以看到,组合注入谱的子带间跃迁峰的积分强度要大于单独注入 As⁺ 的子带间跃迁峰的积分强度,这说明注入质子的过程减少了无辐射复合中心的数量,对跃迁峰的增加有促进作用,对注入过程中造成的缺陷有一定的修复作用,这一效应与文献[16]的报道相似.另一方面,我们也看到组合注入导致的能量移动要大于单独注入的移动.

在注入过程中,尽管自加热温度较低,但在此温

度环境下 II 族原子或空位获得能量已开始相互扩散,经过扩散以后,Ga 原子与 Al 原子在界面上的分布不再陡峭,呈误差函数形式<sup>[12]</sup>,导致势阱和势垒的形状发生了变化.图10给出了离子注入以后的耦合量子阱子能级位置和波函数分布.计算表明,注入以后会导致原来在势阱中的低能级抬高,而高能级降低.本文实验谱中表现的是低能级之间的跃迁情况,所以正象实际上观察到的那样,随着注入剂量的增加,受限态跃迁峰向高能方向移动.

### 3 结论

用组合注入的方法在 GaAs/AlGaAs 耦合双量子阱上获得了不同注入离子和不同注入剂量的单元,不经过快速热退火过程,在室温下采用光荧光谱

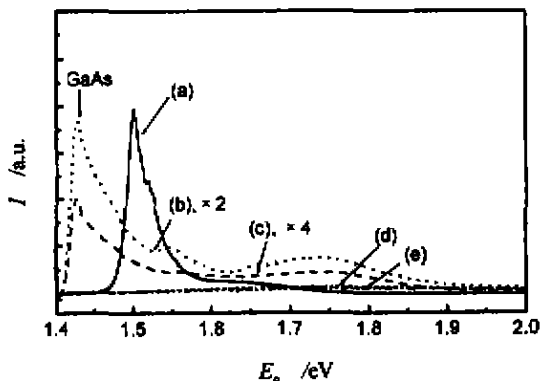


图7 注入不同剂量 As⁺ (如图4)的 PL 谱  
Fig. 7 PL spectra with As⁺ implantation under different doses as in Fig. 4

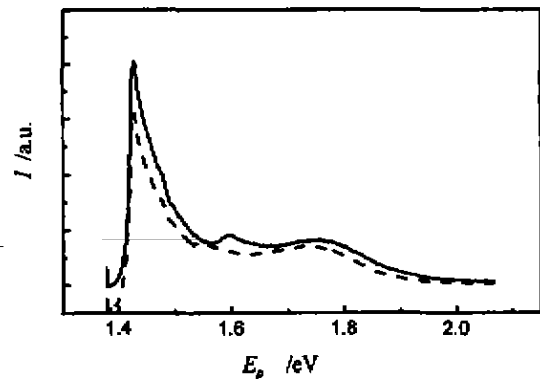


图9 组合注入 As⁺ 和质子以及单独注入 As⁺ 的 PL 谱,注入剂量为  $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ ,实线为组合注入的 PL 谱,虚线为单独注入 As⁺ 的谱线  
Fig. 9 PL spectra with implantation doses of  $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ , solid lines, combinatively implanted with As⁺ and proton, dashed line, implanted with As⁺

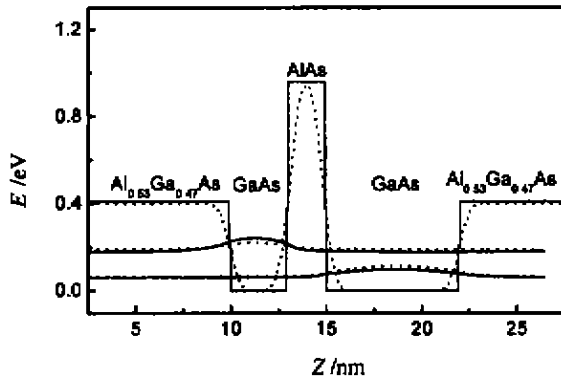


图10 GaAs/AlGaAs 耦合量子阱注入离子后的子能级位置及波函数分布,实线为理想方热阱中的电子子带能级位置,点线为界面混合以后电子子带能级位置

Fig. 10 Wave functions, energy levels of subbands for asymmetrical quantum well, the solid line is for square quantum well, the dashed line is for asymmetrical quantum well after implantation

分析了各个单元子带间跃迁峰位的变化规律,跃迁峰位的最大移动接近 100meV. 组合注入导致的能量移动要大于单独注入的能量移动. 在组合注入过程中,发现质子对注入过程中造成的缺陷有一定的修复作用. 与其它离子注入工作不同之处在于我们的工作不进行快速热退火,但同样可以观察到耦合量子阱中明显的子能级移动现象. 我们认为离子注入过程已能帮助界面混合,从而揭示了离子注入辅助界面混合技术中须考虑的新物理现象.

## REFERENCES

- [1]Major J S, Hall D C, Guido L J, *et al.* High-power disorder-defined coupled stripe  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As-GaAs-In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  quantum well heterostructure lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **55**(3): 271—273
- [2]Miyazawa T, Kagawa T, Iwamura H, *et al.* Growth of (111) CdTe on tilted (001) GaAs. *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **54**(9):828—831
- [3]Werner J, Kapon E, Stoffel N G, *et al.* Integrated external cavity GaAs/AlGaAs lasers using selective quantum well disordering. *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **55**(6): 540—542
- [4]Cibert J, Petroff P M, Dolan G J, *et al.* Optically detected carrier confinement to one and zero dimension in GaAs quantum well wires and boxes. *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **49**(19):1275—1277
- [5]Leier H, Forchel A, Maile B E, *et al.* Carrier capture in intermixed quantum wires with sharp lateral confinement. *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **56**(1):48—50
- [6]Cibert J, Petroff P M, Werder D J, *et al.* Kinetics of implantation enhanced interdiffusion of Ga and Al at GaAs-Ga<sub>x</sub>Al<sub>1-x</sub>As interfaces. *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **49**(4): 223—225
- [7]Hirayama Y, Horikoshi Y, Okamoto H. Interdiffusion of Al and Ga in Si-Implanted GaAs-AlAs Superlattices. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1984, **23**:1568—1571
- [8]Weiss B L, Bradley I V, Whitehead N J, *et al.* Disorder of AlGaAs/GaAs quantum well structures using low dose oxygen implantation. *J. Appl. Phys.*, 1992, **71**(11): 5715—5717
- [9]Ralston J, Wicks G W, Eastman L F, *et al.* Defect structure and intermixing of ion-implanted  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}/\text{GaAs}$  superlattices. *J. Appl. Phys.*, 1986, **59**(1): 120—123
- [10]Kash K, Tell B, Grabbe P, *et al.* Aluminum ion-implantation enhanced intermixing of GaAsAlGaAs quantum-well structures. *J. Appl. Phys.*, 1988, **63**(1): 190—194
- [11]Hirayama Y, Suzuki Y, Tarucha S, *et al.* Compositional disordering of GaAs- $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  superlattice by Ga focused ion beam implantation and its application to submicron structure fabrication. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1985, **24**(7): L516—L518
- [12]Gregory F Redibo, Harold G Craighead. Proton implantation intermixing of GaAs/AlGaAs quantum wells. *J. Appl. Phys.*, 1993, **74**:3099—3102
- [13]Takagaki Y, Muraki K, Tarucha S. Splitting of resistance peaks and anomalous Hall plateaus in asymmetric double-quantum well structures. *Phys. Rev.*, 1997, **B56**(3): 1057—1060
- [14]Xiang X D, Sun X D, Briceno G, *et al.* A combinatorial approach to materials discovery. *Science*, 1995, **268**(5218):1738—1740
- [15]Liu X Q, Lu W, Li Ning, *et al.* Wavelength tuning of GaAs/AlGaAs quantum-well infrared photodetector response by impurity enhanced intermixing. *COMMAD*, 1416 Dec. 1998, Perth, Australia 458
- [16]LIU X Q, CHEN Chang-Ming, LI Zhi-Feng, *et al.* Application of the combinatorial approach to the fabrication of a quantum well multiwavelength emitting chip. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **75**(17): 2611—2613
- [17]LI Zhi-Feng, LIU Xing-Quan, CHEN Chang-Ming, *et al.* Ion-implantation approach to fabricate multiwavelength emitting chip. *J. Infrared Millim. Waves* (李志峰, 刘兴权, 陈昌明, 等. 离子注入制备 GaAs 量子阱集成多波长发光芯片, 红外与毫米波学报), 2000, **19**(3): 181—184
- [18]CHEN Yi-Dong, LIU Xing-Quan, LI Zhi-Feng, *et al.* Study on the lattice vibration of GaAs/SrTiO<sub>3</sub> MBE epitaxial monocrystal film. *J. Infrared Millim. Waves* (陈益栋, 刘兴权, 李志峰, 等. GaAs/SrTiO<sub>3</sub> MBE 外延单晶薄膜晶格振动的研究, 红外与毫米波学报), 2000, **19**(3): 185—187
- [19]LI Na, LU Wei, LI Ning, *et al.* The influence of proton implantation and RTA on GaAs/AlGaAs quantum well infrared detector. *J. Infrared Millim. Waves* (李娜, 陆卫, 李宁, 等. 质子注入和快速热退火对 GaAs/AlGaAs 量子阱红外探测器的影响, 红外与毫米波学报), 2000, **19**(1):25—28