

合金无序和界面不平整对 InGaAs/GaAs 应变量子阱光谱展宽的影响*

徐 强 徐仲英 郑宝真 许继宗

(中国科学院半导体研究所, 国家超晶格微结构实验室, 北京)

1989年7月11日收到

用光荧光和光吸收的实验方法研究了 InGaAs/GaAs 应变量子阱低温下的光谱展宽机理。实验观察到激子谱线半宽随着 InGaAs 层厚度和 In 的组分增加而增大。采用有效晶体近似的方法分析了实验数据, 发现样品中合金组合无序引起的激子谱线展宽是主要的光谱展宽机理。实验中还发现与轻空穴有关的吸收光谱结构在升温过程中由吸收峰变为台阶状的谱结构。该现象可用与轻空穴有关的吸收为空间间接跃过来解释。

主题词 InGaAs/GaAs 量子阱、光谱特性, 应变层材料

一、引言

近年来出现的 InGaAs/GaAs 应变层材料系统, 由于其在光电子技术中的应用前景而得到人们的关注。该材料系统具有下面两个明显的特点:

(1) InAs 与 GaAs 材料的晶格失配为 7%, 因此在 InGaAs/GaAs 量子阱中, 生长层产生了应变。由于这种应变改变了材料的能带结构, 导致应变层材料的物理性质发生了变化。

(2) 对于人们所熟悉的 GaAs/AlGaAs 量子阱材料, 阵层材料是 GaAs, 而在 InGaAs/GaAs 量子阱中, 阵层是合金材料 InGaAs, 因此, 合金组分无序对这两种量子阱材料性质的影响是不同的。

就我们所知, 目前很少看到研究合金组分无序对 InGaAs/GaAs 量子阱材料光学性质影响的工作。本文报告了使用光谱实验方法研究 InGaAs/GaAs 应变量子阱光学性质的结果。通过有效晶体近似的理论, 讨论了合金组分无序和界面不平整在光谱线宽上的效应。此外, 本文还讨论了实验观察到的轻空穴激子吸收在升温过程和 InGaAs 层厚度改变时所出现的线型变化。

* 国家自然科学基金资助项目。

二、光谱展宽机理和有效晶体近似方法

在量子阱材料中，激子跃迁的光谱线宽由均匀线宽和不均匀线宽迭加而成。均匀线宽(Γ_u)是由激子复合的自发发射和激子与声子相互作用离解而产生的。由于激子复合的寿命为毫微秒量级，而激子-声子相互作用使激子离解寿命为皮秒量级，因此均匀展宽主要由激子-声子相互作用贡献。根据文献[1]，光谱的均匀线宽可表示为：

$$\Gamma_u = \alpha T + \Gamma_0 / [e^{\hbar\omega_0 / kT} - 1] \quad (1)$$

(1)式中 α ， Γ_0 是展宽常数，右端两项分别表示声学声子和光学声子对线宽的贡献， $\hbar\omega_0$ 是光学声子的能量。上式表明，均匀线宽与温度有关，在低温下，均匀线宽对激子线宽的贡献很小。

一般认为，不均匀线宽主要是下列因素的影响：

- (1) 杂质与激子相互作用引起的杂质展宽。
- (2) 量子阱界面不平整引起的展宽。
- (3) 多量子阱材料中阱层之间的厚度涨落产生的展宽。
- (4) 合金层中合金组分无序引起的展宽。
- (5) 应变不均匀产生的展宽。

在上述诸不均匀展宽因素中，仅仅杂质展宽与温度有关^[1]。对于未有意掺杂的材料，杂质展宽可以忽略。在应变量子阱材料中，应变不均匀使材料带隙发生变化，导致激子谱线的展宽。但是对于应变层厚度小于临界层厚度的样品，认为应变均匀是合理的^[2]。在多量子阱材料中，生长过程中发生的控制误差，会使生长层之间的厚度出现1—2个原子层厚度的差别。研究表明^[3]，这种层厚之间的尺寸涨落会产生不同的光荧光激发光谱。我们对本工作选用的多量子阱材料进行了光荧光激发光谱实验，当探测波长在 $\pm 10 \text{ \AA}$ 改变时，样品的激发光谱几乎没有变化。此外，后面介绍的光荧光实验数据表明，多量子阱样品的光谱线宽并不大于单量子阱样品。因此，在后面所做的分析中，我们忽略了层厚之间尺寸涨落时光谱线宽的影响。

综上所述，在量子阱材料中激子光谱的不均匀展宽主要来自于界面不均匀起伏和合金组分无序，由于在低温下激子光谱的主要展宽机理是不均匀展宽^[4]，因此本文主要讨论界面不平整和合金组分无序对光谱线宽的影响。

Singh 等人曾提出有效晶体近似(VCA)方法分析半导体材料中的光谱线宽^[5,6]。所谓 VCA 方法，就是在激子尺寸的范围内观察合金材料组分涨落或界面不平整对晶体势的影响，用统计的方法求出在激子尺寸范围内组分涨落和阱层不平整发生的几率，根据由此产生的激子能量的扰动，即可得到相应的激子线宽。

根据 VCA 方法，用 C_A 和 C_B 分别表示激子尺寸范围内 InGaAs 层中 In 和 Ga 的浓度，用 C_A^0 和 C_B^0 表示这两种成分各自的平均浓度 ($C_B^0 = 1 - C_A^0$)，则在激子尺寸范围内，浓度 C_A 发生的几率为：

$$P_e(C_A, C_A^0, R_{ex}) = \exp \left[-\frac{R_{ex}^2}{r_c^3} P_0^{ex} \left(C_A \ln \frac{C_A}{C_A^0} + C_B \ln \frac{C_B}{C_B^0} \right) \right] \quad (2)$$

上式中 r_c 是与组分无序产生的合金团尺寸有关的半径, 在理想情况下, r_c 等于原子间距。 R_{ex} 代表 InGaAs 层中的激子半径, P_0^x 表示激子局域在 InGaAs 层内的几率。

合金组分涨落使激子能量的改变为:

$$\Delta E(C_A, C_A^0, R_{ex}) = [E^{ch}(C_A) - E^{ch}(C_A^0)] - [E_b(C_A) - E_b(C_A^0)] \quad (3)$$

其中 E_b 表示激子束缚能, E^{ch} 是量子阱材料 $n=1$ 子带的带隙。由于激子束缚能在组分涨落下变化很小, 忽略 E_b 的改变对 ΔE 的贡献, 并将差值 $C_A - C_A^0$ 做为扰动处理, 则组分涨落对激子线宽的贡献 Γ_e 写为:

$$\Gamma_e = 2\Delta E(C_A, C_A^0, R_{ex}) = 2 \left[\frac{2C_A^0 C_B^0 r_c^3 (-\ln P_0)}{R_{ex}^3 P_0^x} \right]^{1/2} \Delta_{\partial W} \quad (4)$$

$$\Delta_{\partial W} = \frac{\delta E^{ch}}{\delta C_A} \Big|_{C_A^0} \quad (5)$$

$$E^{ch}(C_A) = E^e + E^h + E_{g0}^W + \Delta E_s \quad (6)$$

(6)式中, E^e 和 E^h 分别为电子和空穴在量子阱中的能级, E_{g0}^W 是量子阱层未应变的带隙能量, ΔE_s 代表应变对阱层材料带隙的影响。

Weisbuch 等人在研究界面对量子阱光谱特性的影响时, 提出了在界面存在岛状结构的模型^[4]。在分子束外延生长薄层材料中, 材料界面会出现原子层厚度的岛或谷, 这些岛或谷的存在改变了量子阱层的厚度, 使得激子发光的能量改变。研究表明, 影响激子能量的主要因素是在材料生长方向上岛或谷的深度 δ_1 和它们的横向尺寸 δ_2 。假设这些岛和谷在界面上的平均密度为 C_i^0 和 C_v^0 , 它们在界面上的横向尺寸分别为 δ_{2i} 和 δ_{2v} , 则在激子尺寸范围内岛和谷的密度为 C_i 和 C_v 的几率为:

$$P_i(C_i, C_v, R_{ex}) = \exp \left[-2 \left(\frac{R_{ex}^2}{\delta_{2i}^2} C_i \ln \frac{C_i}{C_i^0} + \frac{R_{ex}^2}{\delta_{2v}^2} C_v \ln \frac{C_v}{C_v^0} \right) \right] \quad (7)$$

如果量子阱层的平均厚度为 W_0 , 则由于这些岛或谷的存在而导致的有效阱宽为:

$$W = W_0 + 2\delta_1[(C_i - C_i^0) - (C_v - C_v^0)] \quad (8)$$

根据平均阱宽 W_0 和有效阱宽 W 确定相应的激子能量, 可求出相应的激子谱线宽度 Γ_t 。

根据(2)–(8)式, 并采用简单的一维方势阱模型, 计算了 InGaAs/GaAs 应变量子阱中激子线宽 $\Gamma = \Gamma_e + \Gamma_t$ 。计算中使用的 InGaAs 材料的力常数, 形变势, 激子半径等参数, 由文献[7]、[8]给出的 InAs、GaAs 材料的相应值内插而得。应变对 InGaAs 材料带隙的影响 ΔE_s 在计算中也做了考虑^[13]。此外, 为了简化计算, 我们还假设:

(1) 界面不平整和组分无序的程度与 InGaAs 层的厚度无关(但 InGaAs 层的厚度要小于临界层厚度)。

(2) 界面上岛和谷的横向尺寸 $\delta_{2i} = \delta_{2v} = \delta_2$, 岛和谷的厚度 δ_1 为一个原子层的厚度, 它们在界面上的密度 $C_i^0 = C_v^0 = \frac{1}{2}$ 。

(3) 用量子阱中电子和空穴波函数的交迭积分近似计算激子在量子阱中的几率。

图 1 给出了计算得到的激子谱线线宽 Γ 与量子阱阱层厚度的关系。在 In 组分一定时, 阵层界面不平整产生的线宽 Γ_t 随阱层厚度的增加而减小, 但岛和谷的横向尺寸 δ_2 的改变对 Γ_t 影响较大。在阱层的平均厚度 W_0 一定时, Γ_t 随 δ_2 的增加而增加。合金组分

无序决定的线宽 Γ_e 与 Γ_t 的变化趋势不同, 当 W_0 增加时, Γ_e 单调地增加, 并且当 r_c 的尺寸增加时, Γ_e 也变大。 Γ_e 在图 1 中的变化趋势实际上反映了 InGaAs/GaAs 量子阱材料与 GaAs/AlGaAs 材料的差别。在 GaAs/AlGaAs 量子阱中, 合金层是势垒层, 当阱宽增加时, 在势垒层中出现激子的几率减小, 因此合金组分无序对激子能量的扰动减小, 结果导致 Γ_e 随阱层厚度的增大而减小。但在 InGaAs/GaAs 量子阱中, 合金层为势阱层, 在阱层中激子出现的几率随阱层厚度增加而增大, 因此合金组分无序对激子能量的扰动随之增大, Γ_e 也增大。在后面的讨论中将说明, 对于阱宽不很窄的 InGaAs/GaAs 量子阱结构, 合金组分无序决定的谱线半宽 Γ_e 是激子谱线展宽的主要原因。

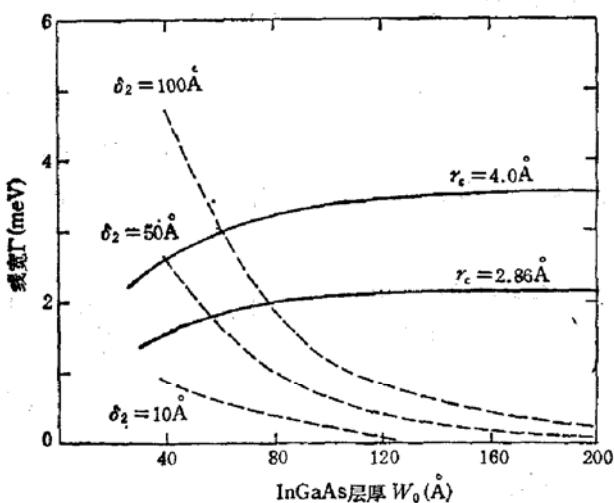


图 1 激子线宽与阱层厚度的关系。虚线表示界面不平整决定的线宽 Γ_t , 实线表示合金组分无序引起的线宽 Γ_e 。计算中所取的 In 组分为 0.16, δ_1 为 InGaAs 层原子间距。

分无序决定的谱线半宽 Γ_e 是激子谱线展宽的主要原因。

三、实验结果

实验样品是用分子束外延方法在 GaAs(001) 衬底上生长的 InGaAs/GaAs 量子阱

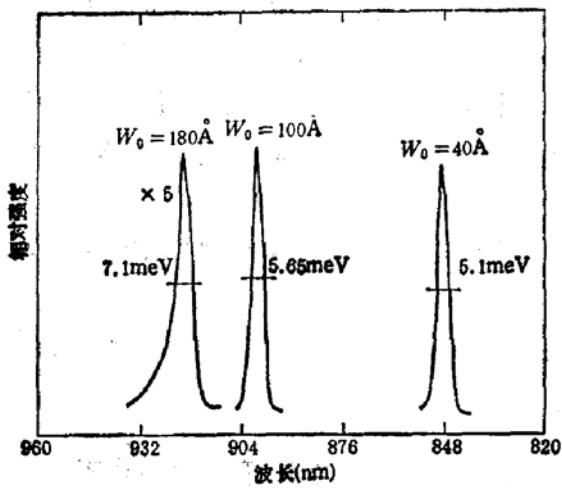


图 2 温度为 10K 时得到的单量子阱样品的光荧光谱。 W_0 代表 InGaAs 层的厚度, In 的组分为 0.16

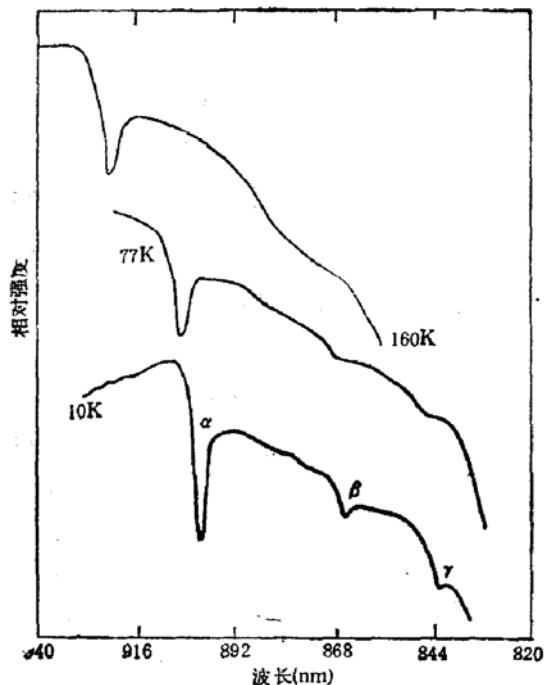


图 3 $In_{0.1}Ga_{0.9}As/GaAs$ 多量子阱样品的光吸收谱。 α 、 β 和 γ 分别表示 $n=1$ 重空穴激子、轻空穴激子和 $n=2$ 重空穴激子的吸收峰。10K, 77K 和 160K 表示实验温度。

W_0 —InGaAs 层厚, W_b —GaAs 层厚。

材料,样品未有意掺杂。实验样品分为两组,第一组样品 In 的组分为 0.16,为单量子阱结构。InGaAs 阵层厚度从 40 Å 到 180 Å 变化。第二组样品具有多量子阱结构,InGaAs 层厚为 80 Å, GaAs 层厚为 120 Å, In 的组分分别为 0.1, 0.15 和 0.20。

采用常规的光荧光和光吸收实验方法,测量了上述样品的低温光荧光和光吸收谱。图 2 是在 10K 时得到的三个单量子阱样品的典型光荧光谱。实验表明,样品在低温下表现出尖锐的激子发光峰,其半最大值线宽基本上随阱宽的增加而增加。变温测量的光荧光谱表明(未给出实验光谱),当温度从 10K 增加到 100K 时,激子线宽没有明显的变化。变温实验结果说明均匀展宽对线宽的贡献在低温下可以忽略不计。

图 3 是一个 InGaAs/GaAs 多量子阱样品的光吸收谱,三条实验光谱分别代表三个不同温度下的实验结果。在 10K 时,谱中出现三个激子吸收结构,分别标记为 α 、 β 和 γ 。它们分别对应于量子阱中 $n = 1$ 重空穴激子、轻空穴激子和 $n = 2$ 重空穴激子的吸收。在温度低于 100K 时,峰 α 的半宽基本不变,但在温度为 160K 时,峰的半宽明显增加了。吸收峰 β 在温度为 77K 时发生了线型变化,成为台阶状的结构。另外两个多量子阱样品的吸收光谱与图 3 中样品的吸收谱相似。

四、分析和讨论

前面的计算结果(图 1)已表明,在 InGaAs/GaAs 应变量子阱中,线宽 Γ_e 随阱层厚度的增加而减小, Γ_e 的变化趋势与文献 [3] 报告的 GaAs/AlGaAs 量子阱的实验结果是一致的。但在我们的实验中,发现 InGaAs/GaAs 量子阱的激子线宽在阱宽增加时反而增大(图 4)。这些现象说明,在 InGaAs/GaAs 量子阱中,合金组分无序是影响激子线宽的重要因素。采用 γ_e (表示合金无序的参量)和 δ_2 (表示界面不平整度的参量)为拟合参量,拟合了激子线宽的实验数据,拟合曲线与实验值的比较在图 4 给出。拟合结果表明,当 γ_e 取值近似为 InGaAs 材料的晶格常数时,对于阱宽大于 100 Å 的样品, Γ_e 与实验值符合的较好,而对于窄阱样品, Γ_e 偏离实验值较大。这种差别实际上反映了在同样界面不平整的条件下, Γ_e 对窄阱的影响大于宽阱样品。综合考虑了线宽 Γ_e 和 Γ_i 时,理论拟合值与实验值符合的很好。

图 5 是第二组多量子阱样品 $n = 1$ 重空穴激子的吸收峰半宽实验值与计算值的比较。由于这组样品阱宽较窄,因此, Γ_i 对线宽的贡献也增大。由于 InGaAs 材料的晶格常数近似随 In 的浓度线性增加^[14],因此我们考虑 γ_e 也为 In 组分的线性函数,按照前面的拟合方法,拟合了实验数据。从图 5 可以看到,拟合值与实验值符合的较好。此外,拟合结果还表明,随着 In 含量的增加,合金层中 γ_e 的值在 4.85—4.92 Å 之间变化,即 γ_e 值位于 InGaAs 层原子间距和晶格常数之间。

从图 4 和图 5 可以发现,阱宽为 180 Å 的单阱样品和 In 组分为 0.2 的多阱样品线宽的实验值与计算值比较偏差较大,这种偏差可以根据 Matthews 等人的临界层厚度理论解释^[3]。对于 In 组分分别为 0.16 和 0.20 的 InGaAs/GaAs 量子阱材料,其相应的临界层厚度分别近似为 210 Å 和 100 Å,由于这些样品的阱层厚度接近临界层厚度,因此界面上失配位错的浓度将显著增加,失配位错浓度的增加的结果使激子发光的强度减小,并且引

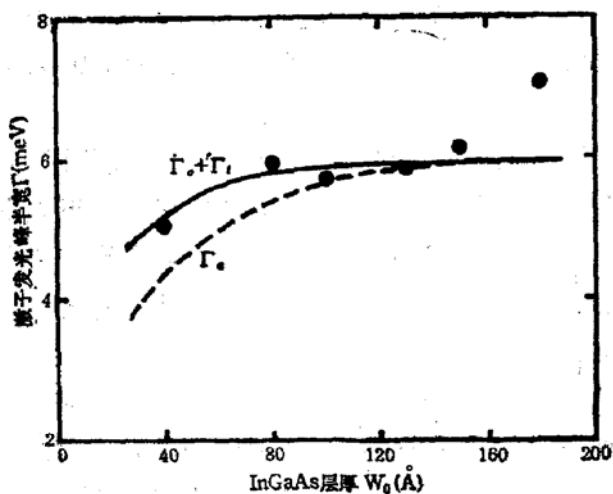


图 4 实验得到的激子线宽(第一组样品)与理论值的比较 ●实验数据,虚线表示合金无序决定的线宽 Γ_0 , 实线代表总线宽 $\Gamma_0 + \Gamma_1$, γ_c 的拟合值为 5.70 Å 。计算中取 δ_1 为 InGaAs 层原子间距, $\delta_2 = 10 \text{ Å}$

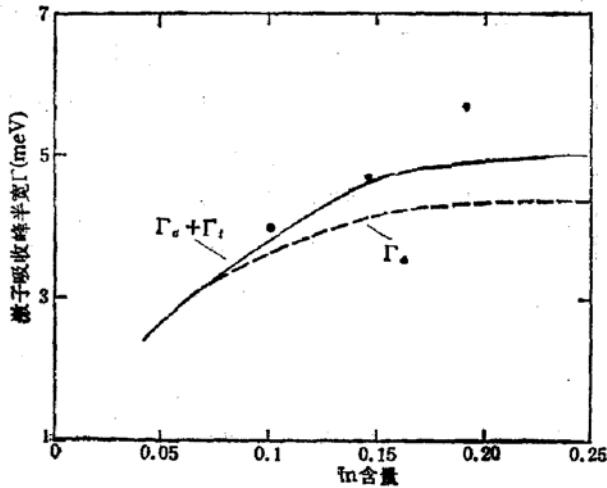


图 5 第二组样品 $n = 1$ 激子吸收线宽的实验值与理论值的比较。计算中取 δ_1 为 InGaAs 层原子间距 W_0 —InGaAs 层厚, W_b —GaAs 层厚, $\delta_2 = 10 \text{ Å}$ 。●实验数据

起谱线的附加展宽^[10]。在图 2 的光荧光谱中, 阵宽为 180 Å 样品的荧光峰强度仅为其它样品荧光强度的 $1/5$, 根据这一实验现象, 认为这两个样品的光谱线宽与理论值的差距来自于失配位错引起的附加展宽是合理的。

文献[11]曾报道, 在 InGaAs/GaAs 应变量子阱中, 轻空穴-电子之间的跃迁在吸收谱中表现为台阶状的线型, 文章作者认为这种吸收线型是带-带跃迁的标志, 并且确认轻空穴-电子之间的跃迁是空间间接跃迁。但在我们的实验中, 与轻空穴有关的跃迁在 10K 时仍表现为与激子吸收相应的吸收峰(图 2 中的吸收峰 β)。我们认为, 在两个实验中轻空穴-电子跃迁出现不同的吸收线型与实验中使用样品的结构参数有关。通常认为, 对于空间间接跃迁, 由于电子和轻空穴限制在不同的空间层中, 电子与轻空穴的波函数交迭较小。由于激子的振子强度正比于 $|\phi(Z_e) \cdot \phi(Z_{lh})|^2$ (其中 $\phi(Z_e)$ 、 $\phi(Z_{lh})$ 分别代表电子、轻空穴的包络函数), 因此形成轻空穴激子的几率较小。但是, 轻空穴激子的振子强度与 InGaAs/GaAs 量子阱的阱层和垒层厚度有关。对于较窄的阱层和垒层厚度, $|\phi(Z_e) \cdot \phi(Z_{lh})|^2$ 相对较大, 因此轻空穴激子的振子强度相应增大, 而对于较宽的阱层和垒层厚度, 振子强度相对较小。此外, 轻空穴激子的束缚能小于重空穴激子的束缚能, 轻空穴激子容易在温度升高时离解。图 2 中的样品 InGaAs 和 GaAs 层厚分别为 80 Å 和 120 Å , 而文献[11]中的样品的 GaAs 层厚为 200 Å , 因此在低温下, 我们使用的样品更容易观察到轻空穴激子的吸收。从图 2 还看到, 当温度为 77K 时, 跃迁峰 β 成为台阶状的线型, 表明与轻空穴有关的跃迁发生了从激子跃迁到带-带跃迁的转变, 这种光谱线型的变化支持了上面所做的分析。

五、结 论

根据实验结果和上述讨论, 我们认为在 InGaAs/GaAs 量子阱中, 低温下激子光谱的主要展宽机理是合金组分无序和界面不平整的影响。对于阱宽大于 100 Å 的样品, 主要

的线宽产生于合金组分无序对激子能量的扰动,而对于阱宽较窄的量子阱结构,这两种展宽机理对线宽的贡献都是重要的,但组分无序产生的线宽仍比界面不平整对线宽的贡献大。因此,为生长高质量的 InGaAs/GaAs 量子阱材料,优化生长条件以减小组分无序度尤为重要。实验还发现轻空穴吸收光谱在升温测量中发生了从激子吸收向带-带吸收过程的转变,这种转变说明轻空穴激子有较小的激子束缚能。通过与其他文献的实验结果比较,我们认为在本实验样品的 In 组分范围内,轻空穴激子的吸收光谱行为是空间间接跃迁的特征,即在 InGaAs/GaAs 量子阱中,当 In 组分 ≥ 0.1 时,轻空穴受限在 GaAs 层中。

参 考 文 献

- [1] J. Lee, E. S. Koteles and M. O. Vassell, *Phys. Rev.*, **B33**, 5512(1986).
- [2] I. J. Fritz, S. T. Picraux, L. R. Dawson, and T. J. D'ummond, *Appl. phys. Lett.*, **46**(10), 967(1985).
- [3] C. Weisbuch, R. Dingle, A. C. Gossard, and W. Wiegmann, *Solid state Commun.*, **38**, 709(1981).
- [4] C. Weisbuch, R. Dingle, P. M. Petroff, A. C. Gossard, and Wiegmann, *Appl. phys. Lett.*, **38**, 840(1981).
- [5] J. Singh, K. K. Bajaj, *Appl. phys. Lett.*, **44**(11), 1075(1984).
- [6] J. Singh, K. K. Bajaj, S. Chaudhuri, *Appl. phys. Lett.*, **44**(8), 805(1984).
- [7] A. Baldereschi and N. C. Lipari, *Phys. Rev.*, **B3**(2), 439(1971).
- [8] S. H. Pan, H. Shen, Z. Hang, F. H. Pollak, Weihua Zhuang, Qiang Xu, A. P. Roth, R. A. Masut, C. Lacelle, and D. Moris, *Phys. Rev.*, **B38**(5), 3375(1988).
- [9] J. W. Matthews and A. E. Blackeslee, *J. Crystal Growth*, **27**, 118(1974); **29**, 273(1975); **32**, 265(1976).
- [10] F. G. Andersson, Z. G. Chen, V. D. Kulakovskii, A. Uidin, and J. T. Vallin, *Appl. Phys. Lett.*, **51**(10), 752(1987).
- [11] G. Ji, D. Huang, U. K. Reddy, T. S. Henderson, R. Houdre, and H. Morkoc, *J. Appl. Phys.*, **62**(8), 3366(1987).
- [12] J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and B. Sermage, *Phys. Rev.*, **B31**(12), 8298(1985).
- [13] 徐强、徐仲英、庄蔚华,红外研究, **8**, 103(1989).
- [14] Landolt-Bornstein, Numerical Data and Functional Relationship in Science and Technology, New Series, Ed. O. Madelung (Springer, Berlin, 1982), Vol.17.

Influences of Alloy Disorder and Interface Roughness on Optical Spectra of InGaAs/GaAs Strained-Layer Quantum Wells

Xu Qiang, Xu Zhongying, Zheng Baozhen and Xu Jizong

(Institute of Semiconductors, Academia Sinica, Beijing, China; National Laboratory
for Superlattices and Related Microstructures)

Abstract

We present studies of alloy composition and layer thickness dependences of exciton linewidths in InGaAs/GaAs strained-layer quantum well grown by MBE, using both photoluminescence and optical absorption. It is observed that linewidths of exciton spectra increase with indium content and well size. Using the virtual crystal approximation, the experimental data are analyzed. The results obtained show that the alloy disorder is the dominant mechanism for line broadening at low temperatures. In addition, it is found that the absorption spectrum related to light hole transitions has varied from a peak to step-like structure as the temperature increases. This behavior can be understood by the space-indirect transition of light holes.

Key words InGaAs/GaAs quantum wells, optical behavior, strained-layer materials