

In_{0.6}Ga_{0.4}As/InP 应变量子阱的光致发光*

高瑛 刘学彦 赵家龙 苏锡安

(中国科学院长春物理研究所 长春 130021)

秦福文 杨树人 刘宝林 陈佰军 刘式墉

(吉林大学电子工程系 长春 130023)

摘要 本文研究了不同阱宽的 In_{0.6}Ga_{0.4}As/InP 应变量子阱的光致发光, 通过量子尺寸效应和压缩应变引起的峰值能量位移判断了不同谱峰的跃迁。在一定的温度范围内, 相应量子阱的发光强度随着温度的升高而增加, 当温度高出此范围, 其光强随温度的升高而减小, 此温区不仅与阱宽有关, 且随激发光强而变化。我们用量子阱的限制效应和激子的转换机理, 初步探讨了此温度范围的形成和消失。

PACC: 6855, 7855

1 引言

In_{0.6}Ga_{0.4}As/InP 半导体材料在光电子器件的应用中受到人们广泛重视, 它包含了石英光纤的最小吸收区(1.55 μm)和零色散区(1.3 μm), 常被用来制作长波长光纤通讯激光器, 探测器和调制器。近年来, 随着材料生长技术的发展和完善, 应变量子阱结构的引入, 人们能按预先的设计, 使能带发生有利于器件性能的变化, 如 In_{0.6}Ga_{0.4}As/InP 异质结的压缩应变不仅可拓宽波长范围, 而且可使简并价带产生分裂, 改变轻、重空穴带的形状和位置, 减少导带和价带有效质量的不对称性, 从而降低了价带内自由载流子吸收和俄歇复合^[1], 有利于提高激光器性能和设计新型器件。

LP-MOVPE 是生长突变陡峭异质结薄层的主要方法之一, 国内已用这种方法获得了 In_xGa_{1-x}As/InP 量子阱材料^[2], 并用光致发光测量了它们的量子尺寸效应和谱线线宽^[3], 而应变的 In_{0.6}Ga_{0.4}As/InP 量子阱材料近两年才开始生长, 它们比晶格匹配量子阱的物理特性更复杂, 光学性质的研究也不成熟。国外在理论上计算了这种材料不同 x 应变量子阱的能带结构^[4]也预示了激子的有关特性^[5]。我们通过光致发光实验测量了不同温度下不同阱宽压缩应变 In_{0.6}Ga_{0.4}As/InP 量子阱的光谱, 根据量子尺寸和应变效应产生的峰值位移, 鉴别了不同谱峰的跃迁, 在实验中, 我们观察到低温区特定条件下, 光致发光强度随温度的升高而增加, 达到一定温度后又开始减少, 此时光致发光的温度依赖关系和激发光强紧密相关。激发光强时, 光致发光强度随温度升高而增加; 激发光弱时, 则随温度的升高而减少。这种现象不仅取决于阱宽, 也取决于激发光强, 表征了不同激发条件下量子限制效应所产生的结果, 反映了量子阱结构中激子的转换过程, 因而也是区别于体材料的一种特征。

* 中国科学院长春物理所激发态物理开放实验室资助项目

高瑛 女, 1939 年生, 副研, 当前从事发光二极管的辐射机理和 III-V 族半导体材料的深能级研究

刘学彦 男, 1953 年生, 工程师, 当前从事半导体材料的深能级和可见与近红外发光测量工作

赵家龙 男, 1963 年生, 助研, 当前从事半导体低维材料的非线性光学和 III-V 族半导体材料的光学性质研究

1993 年 9 月 11 日收到初稿, 1994 年 1 月 21 日收到修改稿

2 实验

采用法国 ASM 公司的 OMR-12 型水平式 MOVPE 设备生长样品, 反应过程中 TMGa 和 TMIn 的源温分别恒定在 -11°C 和 30°C , 而纯的 AsH_3 和 PH_3 置于室温。生长时首先对 $\text{InP}(100)$ 衬底进行热处理, 分步升温并通 PH_3 进行保护。在生长温度下保持 TMIn 流量为 $10\mu\text{mol}/\text{min}$ 不变而调整各种源的流量, 先生长 200nm 缓冲层以减少衬底表面缺陷, 再生长一层 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ 参考层及四个不同宽度的势阱, 其设计阱宽分别为 $10\text{nm}, 7.5\text{nm}, 5\text{nm}, 3\text{nm}$, 势阱之间的势垒厚度都是 20nm , 最后生长一层 50nm 的 InP 盖层。阱垒之间的切换时间为 2s , 生长 InP 的 V/III 比为 $250—300$, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 的 V/III 比为 $50—70$, 样品的表面平滑光亮。

光致发光以 632.8nm 氦氖激光器作光源, 经过聚焦和减光使激发强度在 $10^2\text{W}/\text{cm}^2—10^{-2}\text{W}/\text{cm}^2$ 间变化, 样品置于氮循环制冷器中, 其温度可从 14K 升至 300K , 用 МДР-2 型光栅单色仪分光, 再用液氮冷却的 EO-817 型 Ge 探测器和 EG&G 锁相放大器接收放大讯号后记录, 以测量不同激发条件下的近红外光致发光。

3 结果

3.1 不同阱宽压缩应变量子阱的光致发光

在 77K 液氮温度下, 测得的近红外光致发光谱如图 1 所示, 通过高斯型分峰拟合, 四个谱峰的峰值能量分别为 $0.867\text{eV}(1.43\mu\text{m}), 0.838\text{eV}(1.48\mu\text{m}), 0.80\text{eV}(1.55\mu\text{m})$ 和 $0.761\text{eV}(1.63\mu\text{m})$ 。应变量子阱中, 导带第一子带到底空穴第一子带的光致发光的跃迁能量为三者之和: (1)与 Ga 组分有关的带隙能量 $E_g(x)$ 。 (2)电子和重空穴的束缚能量与激子束缚能量之差。 (3)电量子尺寸效应引起的“蓝移”。由应变层设计的晶格失配度 $a_{\text{eff}}-a/\text{as}=0.5\%$, 得出 Ga 组分值 $x=0.4$, 通过计算(1)和(2)两项能量之和为 0.763eV , 分别比实验测得的光致发光的光谱峰值能量小 $0.104\text{eV}, 0.75\text{eV}$ 和 0.035eV , 此能量差由不同阱宽量子尺寸效应所引起^[6], 图 2 实验获得的前三个谱峰分别是阱宽为 $5\text{nm}, 7.5\text{nm}$ 和 10nm 量子阱内的激子跃迁, 最后一项则起源于参考层。

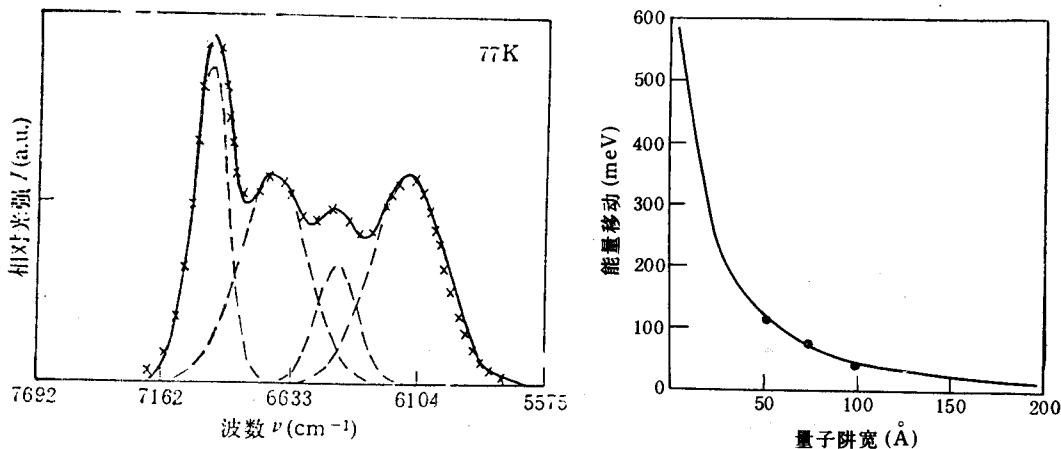
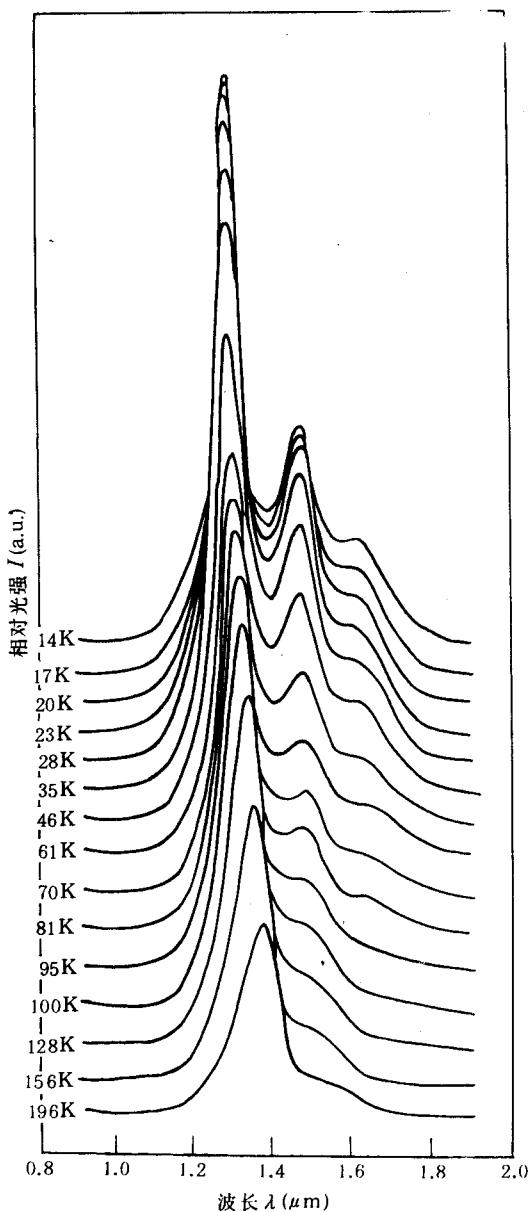


图 1 $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{InP}$ 不同阱宽应变量子阱的光致发光

图 2 不同阱宽中由量子尺寸效应产生的能量移动
实线为理论曲线 ●为本工作实验值

图 3 不同温度下 $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{InP}$ 量子阱的光致发光

InP 量子阱中, 通过不同的激子转换机理, 对类似的温度依赖关系作过解释^[7]. 当温度<10K时, 可移动的激子很少, 受激的激子限制在阱内运动, 温度继续升高时, 窄阱势垒最浅, 阵内激子可能转换到邻近较宽的阱中. 对我们的样品而言, 3nm 阵内的激子可以转换到5nm 阵内, 光致发光对温度的依赖关系取决于两种过程, 一种是与波尔兹曼分布有关的指数衰减, 另一种是3nm 阵内转入5nm 阵内的激子数. 当前一过程小于后一过程, 就出现了5nm 阵内激子跃迁产生的光致发光强度随温度升高而增加的现象, 而3nm 阵中相应的激子减少, 发光当然很弱. 说明 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ 量子阱结构, 无论是压缩应变还是晶格匹配的

3.2 不同温度压缩应变量子阱的光致发光

随着温度的升高, 光致发光的峰值能量向长波方向移动, 不同温度下应变 $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{InP}$ 量子阱的光致发光如图3所示.

在量子阱内, 载流子浓度随位能的指数函数而变化, 势垒越高, 浓度越小, 这也是微观粒子进行热运动的普遍规律, 即玻尔兹曼分布.

$$\text{因此}, \quad n(x) = n_0 e^{-E_0/kT} = n_0 e^{eV/kT}$$

通过不同猝灭渠道, 通常光致发光强度随温度的升高而减少, 并可通过强度的衰减求出热激活能, 在我们的样品, 即势垒宽度为20nm 不同阱宽的量子阱中. 发现光致发光的温度依赖关系难以用这样简单的规律描述, 图3中已看出这种趋势, 尤其是低温区, 光致发光随温度的变化比较复杂. 我们仔细地考察了循环氦气温度附近的光谱, 用不同强度(聚焦和不聚焦)的激发光测量同一样品, 为避免繁琐的分峰, 选择适当的光强, 着重考察阱宽为5.0nm 量子阱光致发光强度随温度的变化. 用聚焦激光($10\text{W}/\text{cm}^2$)激发时, 温度从14K升到35K, 光强增加(图4(a)); 用不聚焦的激光($0.6\text{W}/\text{cm}^2$)并加70%减光的弱光激发时, 光强降低(图4(b)), 当激发光强由强变弱时, 光致发光强度随温度的升高从增加逐渐变为减弱的趋势, 温度继续上升则一直衰减.

为给这种现象一个合理的解释, 我们画出样品的能带示意图(图5), 其中 $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{InP}$ 能带的不连续值为0.638eV, 取 $Q = \Delta E_c / \Delta E_v = 0.4 / 0.6$ 得 $\Delta E_c = 0.255\text{eV}$, $\Delta E_v = 0.383\text{eV}$, 由于量子尺寸效应, 窄阱宽比宽阱宽的量子阱具有更大的带隙能量. 在设计的四个阱中, 我们得到三个阱的激子发射光谱, 最窄的3nm 未发现明显的谱峰, 只在某些样品的光谱中, 发现高能带方向的肩峰或带尾, 即使与3nm 阵宽的量子阱有关, 光强也非常低, 在晶格匹配的 $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{InP}$

材料都存在着激子随温度升高由窄阱转换到宽阱的过程,这也可解释改变激发光强时,光致发光温度依赖关系的变化。在聚焦光激发下,窄阱内可积累足够的激子并转换到邻近的宽阱中,而当激发光强减弱时,3nm 阵内产生并转移到 5nm 阵内的激子不多,前一过程大于后一过程,光致发光随温度增加呈降低趋势。

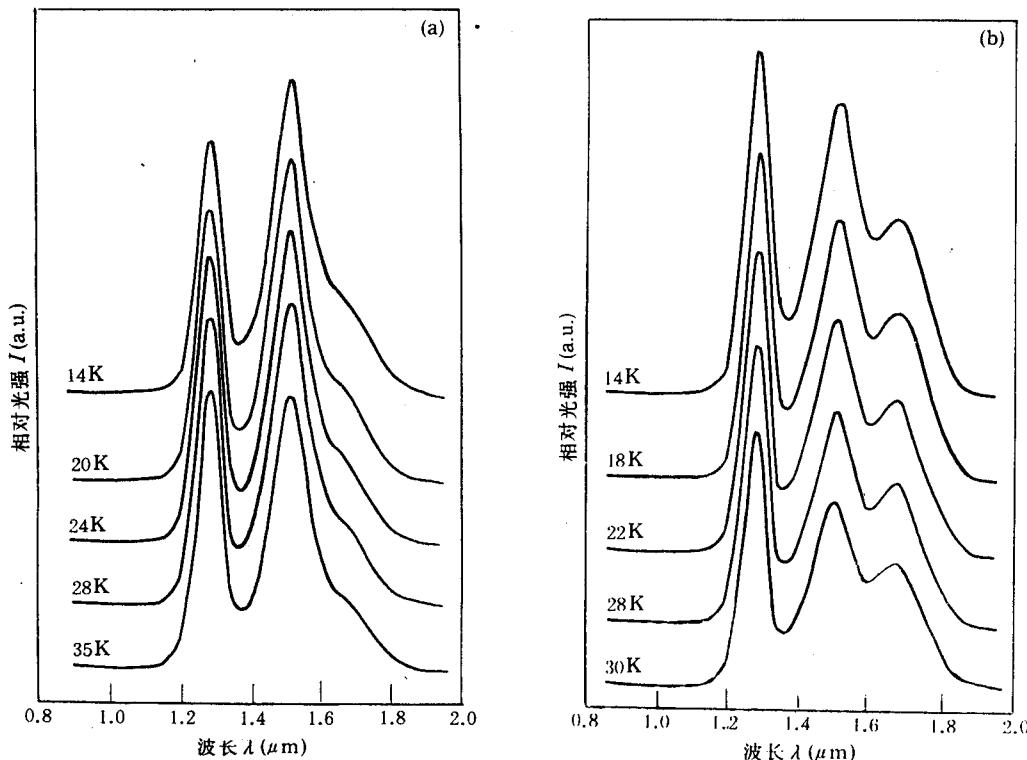
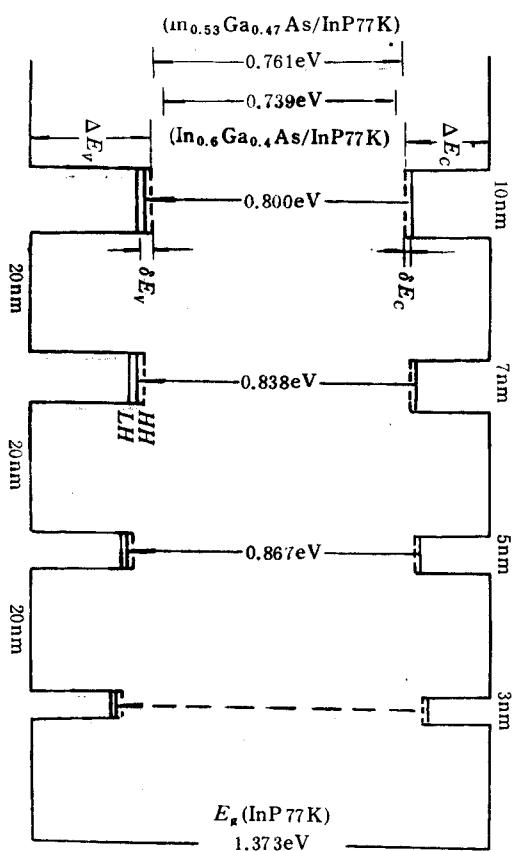
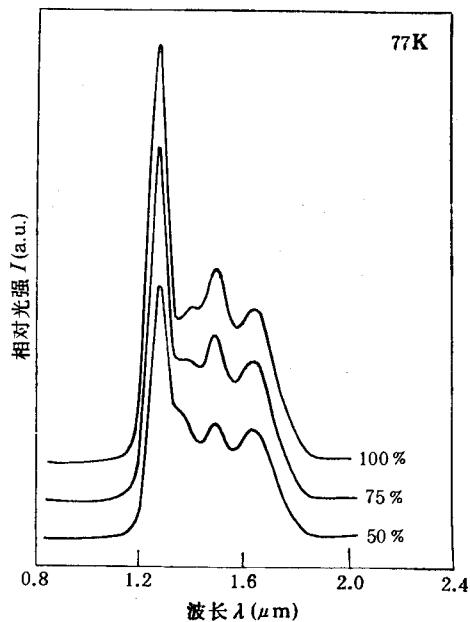


图 4(a) 聚焦光($10 \text{W}/\text{cm}^2$)激发时 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{InP}$
量子阱的低温光致发光

图 4(b) 非聚焦光($0.42 \text{W}/\text{cm}^2$)激发时 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{InP}$
量子阱的低温光致发光

3.3 不同激发光强应变量子阱的光致发光

由于阱的限制和窄阱向宽阱的激子转换,我们发现只要略为改变激发光强,一定温度下相应阱宽的光致发光变化十分明显。我们将聚焦的激光从 100% 逐步减为 75% 和 50% 激发同一样品,其光致发光如图 6 所示。总的看来,随着激发光强减弱,不同阱宽量子阱的光致发光都呈下降趋势,而阱宽为 7nm 量子阱的光致发光变化较为特殊,在未分峰的情况下仍可相对看出,7nm 阵宽量子阱的光致发光(第二峰)强度增加而 10nm 阵宽量子阱的光致发光(第三峰)强度减弱。从氮气循环温度附近,3nm 阵宽内的激子向 5nm 阵宽转换的趋势推论,这种过程在较高的温度下也可能发生在较宽(势垒相对较高)的阱内。如温度为 77K 时,激发光强为聚焦光的 50%,阱宽为 7nm 量子阱内所产生的激子不多,因而跃迁势垒的激子也少,随着激发光强增加,积累了更多的激子,加上 77K 的热激发,它们就有可能跃入邻近宽 10nm 的阱内,从而增加了跃迁几率,这样激发光强从 50% 增至 75% 和 100% 时,第二峰和第三峰光致发光强度之比产生了较大的改变。

图 5 不同阱宽 $In_{0.6}Ga_{0.4}As/InP$ 量子阱的能带示意图图 6 不同聚光焦激发下 $In_{0.6}Ga_{0.4}As/InP$ 量子阱光致发光

4 讨论

应变量子阱材料中,由于轻重空穴简并的消除,每个阱中的光致发光谱峰为两种跃迁的叠加,光谱的峰值半宽度也大于晶格匹配量子阱中单峰的峰值半高宽^[8],同时,量子阱中异界面的不平整会引起阱宽的变化和能级的高斯型展宽,因此应变材料中多个阱内光致发光谱峰的交迭为确切的分峰和辨认增加了困难.本文主要讨论光和热的作用下,不同阱宽量子阱间的激子转移,为简化起见,分峰拟合时主要由导带到重穴带的跃迁来判断不同的光致发光谱,暂忽略了应变材料双峰叠加.

同时,这篇工作也证明了用光致发光研究不同阱宽的量子阱时,激发光强和测试温度的重要性,尤其是激发光强对光致发光强度的影响,即使是样品中的同一点,当激发光强发生微弱的变化时,在特定条件下也会引起光致发光强度的改变化.我们有意选择了较弱的光强激发和较小的变化得到图 6 的结果,当激发强度增加或光强的范围增大到几个量级时则会出现另外的物理现象.

5 结论

我们研究了不同条件下, $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{InP}$ 应变量子阱的光致发光, 测量了不同阱宽, 不同温度和不同激发光强下的光谱, 由于各种物理效应的叠加, 特别是阱的限制和不同阱宽量子阱中激子的转移, 使光致发光强度随激发光强的变化更为敏感, 且在一定的温度范围内, 相应阱宽的光致发光具有更特殊的温度依赖关系, 通过光和热共同作用结果的分析, 不仅为量子阱材料光致发光的峰值位移和强度变化提供了合理的解释, 而且通过适当的设计, 有可能寻求一条提高光致发光强度的有效途径.

参 考 文 献

- [1] 梁春广, 杨瑞麟, 半导体情报, 1991, **28**: 1.
- [2] 段树坤, 熊飞克, 李学斌, 李晶, 王玉田, 江德生, 徐俊英, 万寿科, 钱家骏, 半导体学报, 1991, **12**: 578.
- [3] 陈德勇, 朱龙德, 李晶, 熊飞克, 徐俊英, 万寿科, 梁骏吾, 半导体学报, 1993, **14**: 345.
- [4] S. L. Chuang, Phys. Rev., 1991, **B49**: 9649.
- [5] Y. Jiang, M. C. Teich, W. I. Wang, J. Appl. Phys., 1992, **7**: 769.
- [6] R. Schwedler, F. Reinhardt, D. Grutamacher, K. Wolter, J. Cryst. Growth, 1991, **107**: 531.
- [7] S. Nilsson, A. Gustafsson, X. Liu, L. Samuelson, M. E. Pistol, Superlattices and Microstructures, 1991, **9**: 99.
- [8] E. Kuphal, A. Pocke and A. Eisenbach, J. Appl. Phys., 1993, **73**, 4599.

Photoluminescence Study in Strained $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{InP}$ Quantum Wells

Gao Ying, Liu Xueyan, Zhao Jialong and Su Xi'an

(Changchun Institute of Physics, The Chinese Academy of Sciences, Changchun, 130021)

Qin Fuwen, Yang Shuren, Liu Baolin, Chen Baijun and Liu Shiyong

(Department of Electronic Sciences, Jilin University, Changchun 130023)

Received 11 September 1993, revised manuscript received 21 January 1994

Abstract Strained $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{InP}$ quantum well structures with different widths grown by low pressure metalorganic vapor phase epitaxy are investigated by photoluminescence spectra, their optical transitions are identified and shifts of peaks are mainly due to lattice mismatch and quantum size effect. When the barriers are narrow and comparable with the width of wells, the temperature dependence of PL is not only changed with well width but also influenced by excitation light intensity, which can be interpreted in terms of interwell exciton transfer and confinement effect in quantum wells.

PACC: 6855, 7855