

$\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}/\text{AlGaInP}$ 多量子阱的吸收/反射光谱: 多光束干涉的影响与消减*

邵 军^{1,2}

(1 4 Physikalisches Institut, Universität Stuttgart, D-70550 Stuttgart, Germany)

(2 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)

摘要: 通过测量 GaAs 基 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}/\text{AlGaInP}$ 多量子阱的光学吸收谱, 揭示出采用吸收谱研究该量子阱系统所遭遇的困难, 并判明吸收谱中高频振荡干扰的来源为多光束干涉, 从而指出消减振荡干扰的有效途径在于降低量子阱样品的有效厚度。提出了适用于反射光谱测量的样品结构, 并在实验中观察到激子跃迁。通过对反射谱进行导数操作, 达到了准确测定激子跃迁能量的目的, 为采用反射谱法研究该量子阱系统的光学特性提供了技术基础。

关键词: 吸收谱; 反射谱; 多量子阱; 多光束干涉; 谱导数

PACC: 7865; 7820

中图分类号: O433.5⁺ 1

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2004)06-0651-06

1 引言

$\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}/\text{AlGaInP}$ 异质结构具有 III-V 族半导体低维材料系统中除含氮化合物以外最大直接禁带能量, 在诸如量子阱激光器、高密度光学记录(DVD)、塑料光纤数据通信以及打印等高效、可见光-电应用方面具有广阔前景^[1~4]。在器件设计过程中, 有关材料性质与参数如电子能带结构、激子束缚能和有效质量等知识非常重要。在过去的几年中, 很多研究致力于探讨量子阱的能带结构^[5~10]。比较而言, 关于激子跃迁特性、激子束缚能与有效质量的光学研究却很少。

在过去的十几年中, GaInP 体材料中的 CuPt 型长程有序现象吸引了大量的关注。比较而言, 有关 GaInP/AlGaInP 量子阱中有序现象的光学研究却很少。一个主要原因是实验研究本身的困难。

作为有效的研究手段, 吸收谱和反射谱法被广泛应用于研究半导体的光学特性^[11~16]。但是, 在研

究 GaAs 基 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}/\text{AlGaInP}$ 多量子阱时, 却遇到困难^[17]。其原因是作为研究激子束缚能与有效质量基础的激子跃迁能量无法准确测定。

本文首先测量 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}/\text{AlGaInP}$ 多量子阱吸收谱, 发现吸收谱中存在很强的高频振荡干扰。分析表明, 其来源为 Fabry-Perot 干涉。据此提出对样品结构的调整。通过改测反射谱, 达到显著降低 Fabry-Perot 干涉频率的效果。电子-轻/重空穴的激子跃迁因而得以准确界定。借助于对反射谱施以谱导数操作, 还能够准确测定跃迁能量。为深入研究该量子阱系统的激子特性提供了有力保证。

2 实验

实验测量了 GaAs 基 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}/\text{AlGaInP}$ 多量子阱的吸收谱和反射谱。 Ga 组分 x 分别取为 0.52(晶格匹配量子阱) 和 0.40(压应变量量子阱)。样品由低压金属有机化学气相外延制备, 衬底为 GaAs, 生长温度为 700 ℃。实验中用卤钨灯作激发光源, 用配置

* 上海市自然科学基金(批准号: 02ZA14114), 国家自然科学基金(批准号: 60276006) 和国家重点基础研究专项经费(批准号: G001CB3095) 资助项目

邵 军 男, 1965 年出生, 博士, 主要从事化合物半导体光学特性的研究。

2003-06-08 收到, 2003-11-06 定稿

©2004 中国电子学会

了石英分光镜和硅二极管探测器的傅里叶光谱仪记录光谱。谱分辨率设定为 6cm^{-1} ($\sim 0.7\text{meV}$)。为了获得尽可能强的光谱和好的信噪比，样品被置于液氦中，并通过降低氦气压，使液氦处于超流态(1.8K)。另一方面，为了能更直观地显示用吸收/反射谱观察测定激子跃迁和测定跃迁能量遇到的困难，在垂直于样品表面的方向施加了可变外磁场($0\sim 6.8\text{T}$)。

3 结果与讨论

3.1 吸收谱测量的困难

磁光吸收谱在研究低维半导体材料激子相关效应中非常有效，并广泛用于激子束缚能和结合有效质量的实验测定^[18~21]。但在研究GaAs基GaInP/AlGaInP量子阱时，由于GaAs衬底对 $E > E_g^{\text{GaAs}}$ 具有很强的吸收，而量子阱带间跃迁能量高于 E_g^{GaAs} ，只有在对衬底作部分刻蚀以后才能进行吸收谱测量。出于对样品机械稳定性的考虑，量子阱的AlGaInP缓冲层就要相对厚一些。吸收谱测量所用样品的结构如图1所示。

GaInP	2nm
(Al _{0.66} Ga _{0.34}) _{0.52} In _{0.48} P	B_1
GaInP	10nm
(Al _{0.66} Ga _{0.34}) _{0.52} In _{0.48} P	4nm
Ga _x In _{1-x} P	6 × 10nm
(Al _{0.66} Ga _{0.34}) _{0.52} In _{0.48} P	B_2
GaInP	2nm
GaAs buffer	30nm
Substrate	GaAs

图1 吸收谱测量用样品结构的示意图

Fig. 1 Schematic structure of the sample for absorption measurements

$\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ 量子阱层的Ga组分分别取为0.4和0.52，对应于压应变和晶格匹配两种情况。上下两AlGaInP缓冲层的厚度 B_1 和 B_2 均取为 $3\mu\text{m}$ 。实验前，约 1mm^2 的GaAs衬底被腐蚀掉，以便让测量光能通过样品。

图2给出了晶格匹配($x=0.52$)量子阱样品在不同外加磁场中的典型吸收谱。在测量压应变样品($x=0.4$)时，也观测到了类似的光谱。

除了周期性的振荡以外，并没有可分辨的激子跃迁特征。为了消除周期性振荡的影响并界定激子

跃迁的特征，选择在外磁场为零时测得的吸收谱为参考谱，其他在非零磁场情况下测得的吸收谱与之相除。所得的结果绘于图3中。

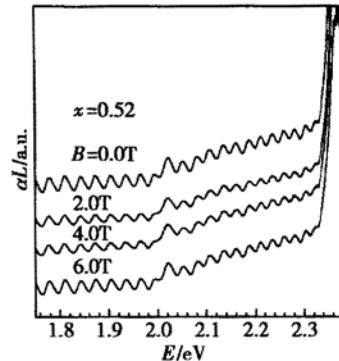


图2 晶格匹配($x=0.52$)量子阱样品在不同外加磁场中的典型吸收谱 测量温度为1.8K。

Fig. 2 Typical absorption spectra of a lattice-matched ($x = 0.52$) quantum-well sample measured at a temperature of 1.8K and different external magnetic fields

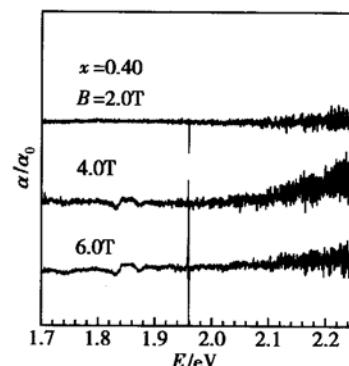


图3 外磁场导致的吸收谱的相对变化

Fig. 3 Change of the absorption caused by external magnetic fields

可以看出，在约 1.96eV 处有一尖锐峰线，这是由于傅里叶光谱仪中He-Ne激光器导致的干扰。在较强外磁场条件下，可以观察到在约 1.83eV 和 1.88eV 能量处出现微弱的凹陷。可以推测，这是由激子跃迁引起的，但是，据此却无法可靠地确定跃迁的能量和谱线宽度等相关信息。可见，要直观而可靠地界定激子的相关跃迁，首先必须消除或显著降低周期性振荡的干扰。

3.2 多光束干涉的影响

对于半导体量子阱材料，能量小于禁带宽度的光能够在材料层中往返多次传播从而引起多光束干涉。对于图4所示层厚为 d ，折射率为 n 的平行板置

于较小折射率介质中($n_0 < n > n_1$)的情形有如下关系^[22]:

$$n_0 \sin \theta = n \sin \varphi \quad (1)$$

$$2n \frac{d}{\cos \varphi} = M \lambda_l \quad (2)$$

$$2n \frac{d}{\cos \varphi} = (M + 1) \lambda_2 \quad (3)$$

这里 M 表示第 M 级透射干涉极大; λ_l 和 λ_2 分别为能保证 M 和 $M + 1$ 级干涉极大的光波长; θ 和 φ 分别为 n_0 和 n 介质中的入射角。依据方程(2)和(3)可得 λ_l 和 λ_2 两波长之间的关系

$$2n \frac{d}{\cos \varphi} = \left| \frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_l} \right|^{-1} = \frac{1}{\Delta \nu} \quad (4)$$

如果 d 用厘米作单位, 则 $\Delta \nu$ 就表示透射谱中相邻两干涉极大所对应的波数差。

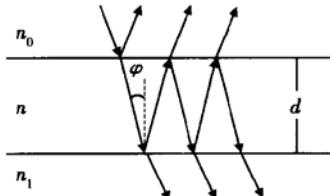


图 4 高折射率平行板中的多光束干涉($n_0 < n > n_1$)。

Fig. 4 Multi-beam interference in a parallel plate with a high refractive index ($n_0 < n > n_1$)

对于图 2 所示吸收谱的样品, 由于 GaAs 衬底在测量前已被腐蚀掉, 实际样品厚度约为 $6\mu\text{m}$ 。若取材料的平均折射率为 3.4, 考虑到是垂直透射, $\varphi = 0^\circ$, 由方程(4)可得

$$\frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_l} \approx 250\text{cm}^{-1} \approx 31\text{meV}$$

这一结果恰好与图 2 的振荡周期相吻合, 表明该周期振荡源于除衬底以外量子阱材料厚度引起的多光束干涉。

根据方程(4), 要降低周期振荡的干扰即增大相邻振荡峰之间的间隔, 必须降低除衬底以外的样品厚度。样品的多量子阱结构对于测量来说也是很重要的, 因为它能有效地增强吸收从而降低多光束干涉的强度。另外, 基于对 GaInP/AlGaInP 量子阱电子结构的分析^[23]和导数操作的要求^[20], $\Delta \nu$ 必须大于或等于 0.2eV , 才能保证可靠地界定源于重空穴、轻空穴和自旋-轨道分裂带的跃迁。这意味着量子阱的层厚必须由约 $6\mu\text{m}$ 减小到 $1\mu\text{m}$ 以下。对于这样薄的材料层, 若像先前那样, 腐蚀掉合适大小的 GaAs 衬

底以便保证足够强的光信号通过, 就很难保证不损坏量子阱。吸收谱测量因而难于实施。相对而言, 反射谱测量的最大好处在于, GaAs 衬底不再需要移除, 样品的有效厚度因而可以降得很低。

3.3 GaInP/AlGaInP 量子阱的反射谱

用于反射谱测量的样品具有类似于图 1 所示的结构。所不同的是, 这里 AlGaInP 缓冲层的厚度 B_1 和 B_2 分别取为 50nm 和 20nm ; GaInP/AlGaInP 量子阱周期数为 9。为了直观地判断量子阱相关跃迁, 分别采用了两种顶层结构: 其一是用 410nm 厚的 GaP: Zn 顶层替代图 1 中的 2nm 厚的 GaInP 层; 其二是仍沿用 2nm 厚的 GaInP 层。对样品的 GaAs 衬底则未作任何腐蚀处理。实验中入射光线与样品的垂线方向成 $\varphi = 45^\circ$ 角。根据方程(1)知, 方程(2)和(4)中 $\varphi = 12^\circ$ 。图 5 给出了改进后的样品的反射谱。为便于比较, 用于吸收谱测量的改进前样品反射谱也一并给出。

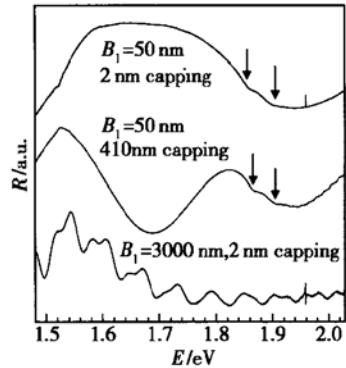


图 5 改进前与改进后样品的反射谱

Fig. 5 Reflectivities of the samples with different structures before and after improving the sample's structure

值得指出的是, 对于反射谱测量来说, 因为 AlGaInP 的折射率较 GaInP 的要小而禁带宽度相对大, 入射光线的反射将主要发生在多个 AlGaInP/GaInP 界面处, 而多光束干涉将主要取决于上 AlGaInP 缓冲层和顶层的厚度。这一点从改进前样品的反射谱干涉峰的间距得到确证。对于相同样品, 反射谱中干涉峰的间距(计及两种测量中光线入射角的不同)大约是吸收谱的 2 倍。这就意味着, 对于多光束干涉来说, 改进前后样品的有效厚度分别约为 $3\mu\text{m}$ 和 $0.5\mu\text{m}$ 。从图 5 可以看出: (1) 覆盖层厚 410nm GaP 样品的干涉峰间距大约为改进前样品的 5 倍; (2) 覆盖层为 2nm GaInP 样品的干涉峰间距大约是覆盖层厚

为 410nm GaP 样品的 3 倍。考虑到覆盖层厚 410nm GaP 和 2nm GaInP 的改进后样品的有效(反射谱)厚度分别大约为 $0.6\mu\text{m}$ 和 $0.2\mu\text{m}$, 不难得出结论, 该实验结果支持前述多光束干涉的分析。

从图 5 可以看出, 改进前后的样品的反射谱的显著区别在于, 改进前的反射谱是近于周期性的振荡, 而改进后的则是在“山包”状起伏的背景中包含着如图中箭头所标注的可分辨的谱线结构。基于“模

型固体”理论和有限深方势阱近似的数值模拟表明, 这种谱线结构源于 GaInP 量子阱中导带到重/轻空穴价带的激子跃迁。这无疑是相对于吸收谱测量的明显进步。在此基础上, 通过对反射谱进行取导数操作^[20,23], 相应跃迁能量便能准确测定。图 6 给出了改进后样品的反射谱及其二阶导数, 为便于比较, 光致发光谱也一并给出。

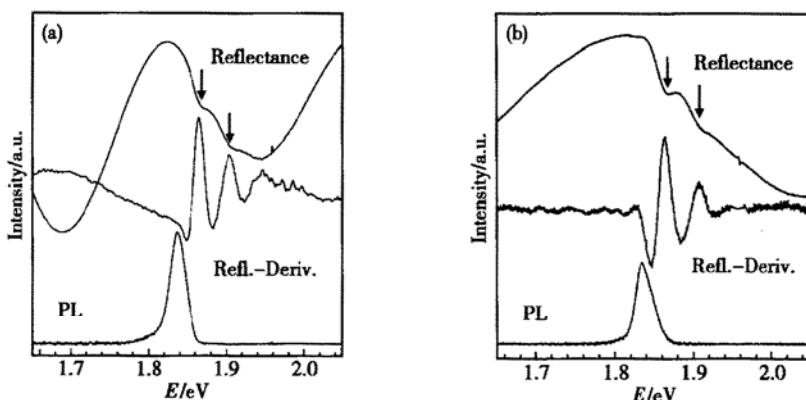


图 6 改进后($B_1=50\text{nm}, B_2=20\text{nm}$)样品的反射谱、导数谱及光致发光谱 (a) 顶层为 410nm GaP; (b) 顶层为 2nm GaInP.

Fig. 6 Reflectivity, its derivative, and PL spectra of a sample with improved structure($B_1=50\text{nm}, B_2=20\text{nm}$) The capping layer is selected as 410nm GaP (a) and 2nm GaInP (b).

相对于原始反射谱, 导数谱的明显特征在于: (1)因为由多光束干涉导致的山包状起伏的周期远较激子跃迁谱线的间隔为大, 它在导数谱中被显著地消减掉了; (2)导数谱给出了类似于光致发光谱的强而窄的谱线。另外可以看出, 顶层的变化导致了反射谱干涉状况的变化。采用 2nm GaInP 顶层的样品, 其山包状起伏的周期来得更大。但是, 反射谱导数则显示出非常相似的结果: 在 1.85~1.90eV 能量范围内均有两个明显的峰。这从实验上直观地排除了反射谱导数的峰来自干涉的可能性。据此, 可以清楚地观察到与量子阱相关的光跃迁, 跃迁能量也可以准确测定。与此相关的研究, 例如激子特性、束缚能与有效质量、量子阱能带结构的实验分析等, 也可顺利展开^[23,24]。

4 结论

通过测量 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}/\text{AlGaInP}$ 多量子阱的光学吸收谱, 本文直观地揭示出吸收谱法研究该量子阱系统所遇到的困难, 并判明吸收谱中高频振荡干扰

的来源为多光束干涉。从而为通过降低量子阱样品的有效厚度来消减振荡干扰奠定了基础。提出了适用于反射光谱测量的样品结构, 并在实验测量中观察到激子跃迁。通过对反射谱进行导数操作, 达到了准确测定激子跃迁能量的目的。为激子束缚能与有效质量的测定、量子阱能带结构的实验分析等研究奠定了基础。

致谢 作者感谢 A. Doemen 和褚君浩的有益讨论, 感谢 F. Scholz, R. Winterhoff 等人提供样品。在德国期间得到德国大众汽车厂基金会(Volkswagen Stiftung)和德意志学术交流中心(Deutscher Akademischer Austauschdienst)的资助。

参考文献

- [1] Thijss P J A. Progress in quantum well lasers: application of strain. In: Digest of the 13th IEEE International Semiconductor Laser Conference, 1992: 2
- [2] Moritz A, Wirth R, Heppel S, et al. Intrinsic modulation bandwidth of strained GaInP/AlGaInP quantum well lasers. Appl Phys Lett, 1997,

- 71(5): 650
- [3] Herrick R W, Petroff P M. Improved reliability of red GaInP vertical-cavity surface emitting lasers using bias induced annealing. *Appl Phys Lett*, 1998, 72(15): 1799
- [4] Smowton P M, Blood P, Chow W W. Comparison of experimental and theoretical gain current relations in GaInP quantum well lasers. *Appl Phys Lett*, 2000, 76(12): 1522
- [5] Kowalski O P, Cockburn J W, Mowbray D J, et al. Hydrostatic pressure determination of tensile strained $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}(\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y})_{0.52}\text{In}_{0.48}\text{P}$ quantum well band offsets. *Phys Rev B*, 1996, 53(16): 10830
- [6] Liedenbaum C T H F, Valster A, Severens A L G J, et al. Determination of the GaInP/AlGaInP band offset. *Appl Phys Lett*, 1990, 57(25): 2698
- [7] Schneider J R P, Bryan R P, Jones E D, et al. Excitonic transitions in InGaP/AlGaInP strained quantum wells. *Appl Phys Lett*, 1993, 63(9): 1240
- [8] Dawson M D, Duggan G. Band offset determination for GaInP/AlGaInP structures with compressively strained quantum well active layers. *Appl Phys Lett*, 1994, 64(7): 892
- [9] Dawson M D, Duggan G. Exciton localization effects and heterojunction band offset in $(\text{Ga}, \text{In})\text{P}/(\text{Al}, \text{Ga}, \text{In})\text{P}$ multiple quantum wells. *Phys Rev B*, 1993, 47(19): 12598
- [10] Kowalski O P, Cockburn J W, Mowbray D J, et al. GaInP/AlGaInP band offsets determined from hydrostatic pressure measurements. *Appl Phys Lett*, 1995, 66(5): 619
- [11] Sugawara M, Okazaki N, Fujii T, et al. Diamagnetic shift and oscillator strength of two-dimensional excitons under a magnetic field in $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ quantum wells. *Phys Rev B*, 1993, 48(12): 8848
- [12] Luo J S, Olson J M, Bertness K A, et al. Investigation of spontaneous ordering in GaInP using reflectance difference spectroscopy. *J Vac Sci Technol B*, 1994, 12(4): 2552
- [13] Winkler R. Excitons and fundamental absorption in quantum wells. *Phys Rev B*, 1995, 51(20): 14395
- [14] Alsina F, Cheong H M, Webb J D, et al. Far-infrared reflection studies in ordered GaInP. *Phys Rev B*, 1997, 56(20): 13126
- [15] Wang X L, Sun D Z, Kong M Y, et al. Exciton transition energies in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ SMQWs as a function of indium composition. *Chinese Journal of Semiconductors*, 1998, 19(6): 417 (in Chinese) [王晓亮, 孙殿照, 孔梅影, 等. $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ 应变量子阱中激子跃迁能量随 In 组分的变化. 半导体学报, 1998, 19(6): 417]
- [16] Dai Z X, Lu S L, Zhao M S, et al. Differential reflectance spectroscopy of GaAs/AlGaAs multiple quantum wells. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2000, 21(11): 1099 (in Chinese) [代作晓, 陆书龙, 赵明山, 等. GaAs/AlGaAs 多量子阱材料差分反射光谱. 半导体学报, 2000, 21(11): 1099]
- [17] Kinder D, Wong S L, Priest A N, et al. Magneto-optical studies of compressively strained GaInP/AlGaInP multiple quantum wells. *Solid-State Electron*, 1996, 40(1~8): 597
- [18] Sugawara M, Okazaki N, Fujii T, et al. Conduction band and valence band structures in strained $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}/\text{InP}$ quantum wells on (001) InP substrates. *Phys Rev B*, 1993, 48(11): 8102
- [19] Volk M, Lutgen S, Marschner T, et al. Carrier effective masses in symmetrically strained (GaIn)As/Ga(PAs) multiple quantum well structures. *Phys Rev B*, 1995, 52(15): 11096
- [20] Shao J, Haase D, Doernen A, et al. Tensile strained InGaAs/InP multiple quantum-well structures studied by magneto-optical spectroscopy. *J Appl Phys*, 2000, 87(9): 4303
- [21] Shao J, Doernen A, Baars E, et al. Forbidden transitions and the effective masses of electrons and holes in $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}/\text{InP}$ quantum wells with compressive strain. *J Appl Phys*, 2003, 93(2): 951
- [22] Moss T S, Burrell G J, Ellis B. Semiconductor optoelectronics. London: Butterworths, 1973
- [23] Shao J, Doernen A, Winterhoff R, et al. Ordering parameter and band-offset determination for ordered $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}/(\text{Al}_{0.66}\text{Ga}_{0.34})_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ quantum wells. *Phys Rev B*, 2002, 66(3): 035109
- [24] Shao J, Doernen A, Winterhoff R, et al. Effective mass and exciton binding energy in ordered (Al) GaInP quantum wells evaluated by derivative of reflectivity. *J Appl Phys*, 2002, 91(4): 2553

Absorption and Reflectivity of GaInP/ AlGaInP Multiple Quantum Wells: Influence and Reduction of Multi Beam Interference^{*}

Shao Jun^{1,2}

(1 4 Physikalisches Institut, Universität Stuttgart, D-70550 Stuttgart, Germany)

(2 National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics,
The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

Abstract: By measuring optical absorption of GaInP/ AlGaInP MQWs, the difficulty is explicitly illustrated in studying by the absorption spectroscopy. The high frequency oscillation observed in the absorption is identified to be multi beam interference. A manner is taken to diminish the interference by reducing the effective thickness of the sample. Improved sample structures are proposed for reflectivity measurement, which leads exciton transitions to be unambiguously identified. With the aid of spectroscopic derivative, the excitonic transition energy can be definitely determined, which warrants a reliable reflectivity study of the optical properties of the MQW systems.

Key words: absorption; reflectivity; multiple quantum wells; multi-beam interference; spectroscopic derivative

PACC: 7865; 7820

Article ID: 0253-4177(2004)06-0651-06

* Project supported by Shanghai Natural Science Foundation(No. 02ZA14114), National Natural Science Foundation of China(No. 60276006), and Special Funds for Major State Basic Research of China(No. G001CB3095)

Shao Jun male, was born in 1965, PhD. He is interested in optical study of compound semiconductors.

Received 8 June 2003, revised manuscript received 6 November 2003

©2004 The Chinese Institute of Electronics