

研究快报

GaAs-GaAlAs 多量子阱结构发光的 激子性质和温度特性*

徐仲英、梁基本、许继宗、郑宝真、
李玉璋、徐俊英、曾一平、葛惟锬

(中国科学院半导体研究所)

1986年10月13日收到

本文详细研究了 GaAs-GaAlAs 多量子阱结构发光的激子性质和温度特性。高质量的量子阱材料在低温下具有窄的激子发光谱线，且在宽广的温度范围内保持激子发光特性。本文首次报道了同一样品中来自宽阱和窄阱的发光谱线在不同温度下的竞争现象。

迄今为止，人们已对 GaAs-GaAlAs 量子阱材料的光学性质做过许多研究工作^[1-3]。低温光致发光光谱、光致发光激发谱研究表明，量子阱中的发光主要表现为 $n=1$ 子能带间的本征激子发光；而在室温发光研究中，既有本征激子发光的报道^[4]，也有子能带间自由载流子发光的报道^[5]，很少有人系统地给出 GaAs-GaAlAs 量子阱结构发光的温度特性。

本文详细研究 GaAs-GaAlAs 多量子阱结构发光的温度特性。研究表明：量子阱结构发光的温度特性取决于不同的样品质量。一般来说，在低温下都可表现为本征激子发光，但随着温度升高，本征激子将发生热离化，发光主要机理由本征激子发光转变为子能带间的自由载流子发光。生长质量好的样品在室温下仍可观察到本征激子发光，因此上述温度特性可以作为材料优劣的一个判据。此外，从发光峰值光子能量位置随温度的变化关系可以直接得到激子的束缚能，其数值大小十分接近 Greene 等人^[6]的理论计算值。本文首次报道在具有不同阱宽量子阱结构的同一样品中，两条分别来自宽阱、窄阱的发光谱线在不同温度下的竞争现象，并认为这是由于不同量子阱结构对光致载流子具有不同的俘获过程以及不同的热猝灭特性造成的。本文给出的 1# 样品的低温 (10.6K) 本征激子发光半宽 (FWHM) 仅为 1.2meV，反映了该样品具有非常好的质量。可以与国外报道的最佳结果相媲美。

实验样品为 GaAs-GaAlAs 多量子阱结构，用 MBE 生长。样品 1 的具体结构为：先生长一个 $L_w = 190 \text{ \AA}$ 的宽阱，然后连续生长阱宽为 141 \AA 的 5 个较窄的阱，势垒层厚度 $L_B = 60 \sim 70 \text{ \AA}$ ， x 值约为 0.25。样品 2 为 GaAs/Ga_{0.75}Al_{0.25}As 多量子阱结构，15 个周期， $L_w = 98 \text{ \AA}$ ， $L_B = 150 \text{ \AA}$ ，有顶盖层。而样品 3 则为 GaAs/AlAs 多量子阱结构，15 个周期，阱宽 $L_w = 125 \text{ \AA}$ 势垒层厚约为 200 \AA ，无顶盖层。

* 国家自然科学基金资助项目。

实验采用常规的光致发光技术,激发谱线为氦离子激光器 5145 Å 谱线,所用单色仪 (Spex 1403) 具有足够高的光谱分辨率,用 RCA 31034A 光电倍增管接收,在所测光谱波段它具有平坦的光谱响应特性.样品置于 CS202 变温致冷装置中,可在 10—300K 范围内控制温度.

图 1 是 1[#] 样品在不同温度下的光致发光光谱.低温 10.6K 时,光谱很锐,有较精细的结构,其中位于 1.536eV 和 1.526eV 的两个发光峰分别对应阱宽 141 Å 和 190 Å 的 $n = 1$ 电子-空穴本征激子发光,分别记 E_{1a} 和 E'_{1a} . 在它们的高能侧各有一个很弱的发光峰,理论计算表明,它们分别对应于 $n = 1$ 电子-轻空穴本征激子发光,记作 E_{1i} 和 E'_{1i} . 从光谱图上看出, E_{1a} 谱线很窄,半高宽 FWHM 仅为 1.2meV,表明所测样品具有非常良好的晶体质量.一般来说,影响发光谱线增宽的主要原因有: (i) 异质界面的高低起伏,根据 MBE 生长原理,通常表现为单原子层起伏,它是阱宽的函数,对于 $L_w = 140$ Å 的阱,由单原子层起伏造成光谱增宽约为 0.7meV; (ii) 阱与阱之间的厚度差异,根据样品的生长速率 (1—2 Å/秒) 和挡板开启时间 (0.3 秒),其数值远小于单原子层尺寸,可以忽略; (iii) 微量的残余杂质和在界面附近不可避免的原子位错团都将导致光谱线的增宽.但是本文给出的结果是迄今为止文献报道的最好结果之一^[7]. 图 1 中 E'_{1a} 高能侧的肩峰很可能是施主束缚激子发光^[8].

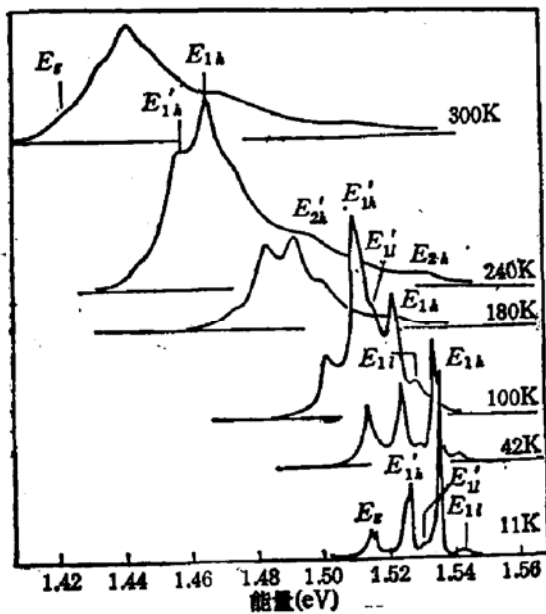


图 1 GaAs-GaAlAs 多量子阱结构 (1[#]样品)不同温度下的光致发光谱

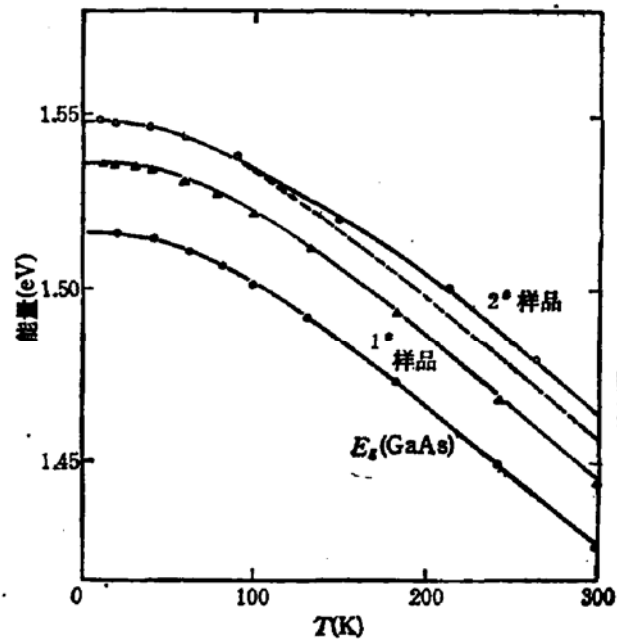


图 2 两个不同样品的 E_{1a} 峰值光子能量随温度的变化

从图 1 可以发现,随着温度升高,光谱发生明显的变化: (i) 高能边斜率减小,即出现高能尾巴; (ii) E_{1i} (E'_{1i}) 相对 E_{1a} (E'_{1a}) 增强; (iii) 出现较高序数的子能带跃迁,例如 E_{2a} 和 E'_{2a} . 上述实验现象可以定性地用载流子的热分布来解释.由图 1 还可以发现,随着温度的变化, E_{1a} 和 E'_{1a} 相对强度发生变化: 11K 时, E_{1a} 发光峰比 E'_{1a} 强得多,随着温度升高, E'_{1a} 相对强度增强, 100 K 时 E'_{1a} 明显超过 E_{1a} , 进一步提高温

度, E_{1k} 再次增强, 成为整个光谱的主峰. 我们曾在不同结构的样品中观察到类似的现象. 这个现象至今尚未见诸报道. 我们相信, 这是由于不同量子阱结构对光致载流子的不同俘获过程和量子阱发光的不同温度猝灭特性造成的.

图 2 表示 1[#] 样品和 2[#] 样品的 E_{1k} 峰值光子能量随温度的变化. 为便于比较, 同时画出了实验得到的体 GaAs 缓冲层带边发光位置的温度依赖关系. 由于量子尺寸效应, 量子阱材料的发光峰值位置明显移向高能. 光谱移动量是阱宽 L_z 的函数, 可近似用

$$E = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{\pi}{L_z} \right)^2$$

表示. 由图可以看出, 由样品 1 发出的电子-重空穴本征激子发光具有与带边相同的温度特性, 在整个实验温度范围内, 曲线 1[#] 平行于 $E_g(\text{GaAs})$. 但曲线 2[#] 则不然, 其与 E_g 的能量差随温度而异. 为清楚起见, 把 $E_g(\text{GaAs})$ 向上平移(图中用虚线表示) $T < 100\text{K}$ 时, 两条曲线重合, $T > 200\text{K}$ 时, 两曲线相互平行, 间隔能量差为 8meV 左右, 这个数值十分接近 Greene^[6] 等人理论计算得到的量子阱中的本征激子束缚能. 因此有理由认为随着温度的增加, 发光机理发生了变化: 由本征激子发光转变为自由载流子复合发光. 在 $100\text{K} < T < 200\text{K}$ 范围内, 同时存在两种发光过程, 只是由于光谱线的热增宽很难在光谱上区分出两个发光峰.

关于上述发光机理的变化过程还可以用发光的激发强度关系得到证实. 简单的理论分析表明, 发光强度 $PL(I)$ 与激发强度 P_{10} 的关系可以用下式表示:

$$PL(I) = CP_{10}^\alpha \quad (1)$$

其中幂指数 α 的值取决于不同的发光机理, 对激子发光过程 $\alpha = 1$, 而对于自由载流子

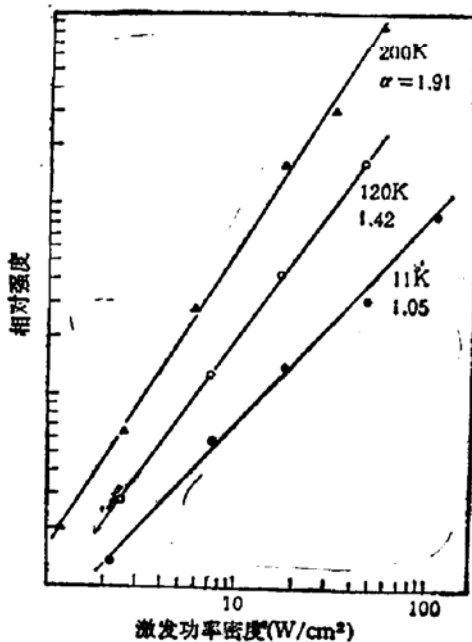


图 3 不同温度下光荧光强度随激发强度的变化

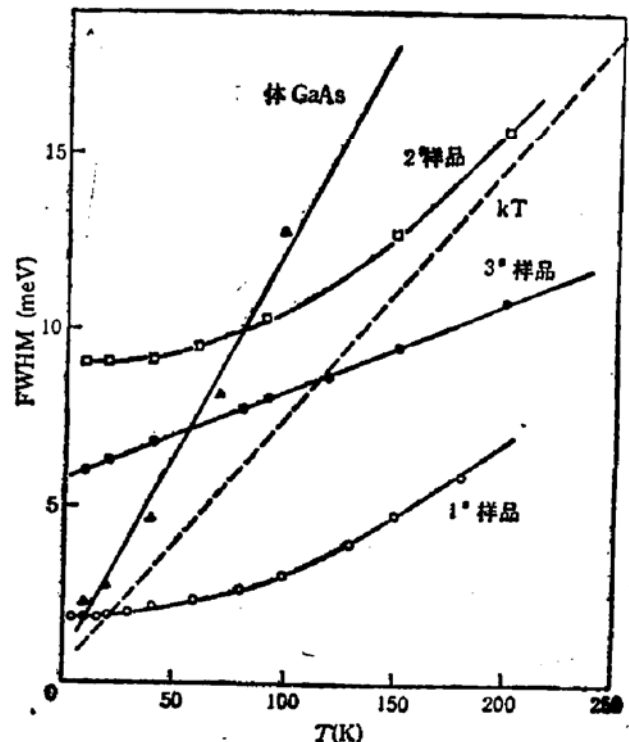


图 4 量子阱结构发光光谱半宽随温度的变化

发光 $\alpha=2$; 当发光过程既有激子参与又有自由载流子参与时, 幂指数 α 介于 1 和 2 之间, 这点已为实验所证实. 图 3 表示 2[#] 样品在三个温度下 E_{1s} 发光峰的积分光强随激发强度的变化, 11K 时 $\alpha = 1.05$, 表明此时的发光过程是本征激子发光; $T = 200K$ 时, $\alpha = 1.91 (\approx 2)$, 表现出自由载流子发光特性; 而在 120K 时, $\alpha = 1.42$, 说明发光过程同时包括上述两个机制. 上述分析有力地支持了我们对图 2 的实验结果作出的解释. 同时我们认为量子阱结构发光的上述温度特性可以用来定性判断晶体生长质量, 通常室温下的激子发光被认为是晶格完整、界面完好的一个重要标志. 事实上, 光谱研究表明, 2[#] 样品低温下谱线宽度将近 9meV, 同时有较强的杂质发光峰, 反过来也说明上述结论是正确的.

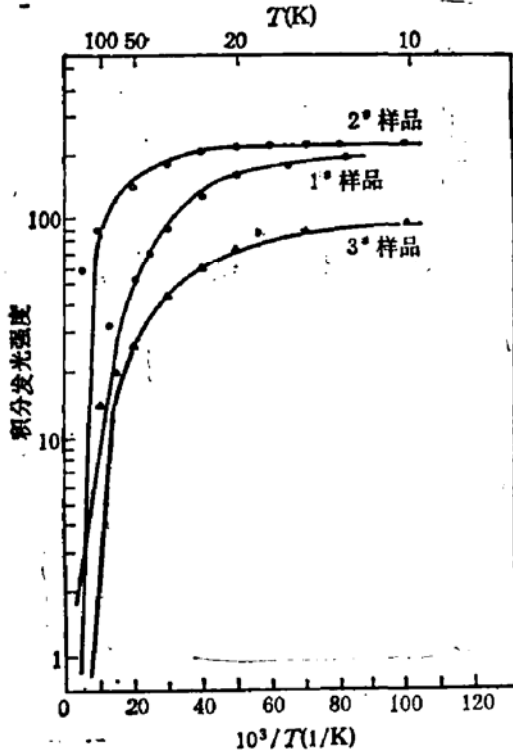


图5 量子阱发光的热猝灭曲线

这个结果与前述实验结果基本一致.

最后我们来讨论量子阱发光 (E_{1s} 发光峰) 的温度猝灭过程. 实验结果如图 5 所示. 每条曲线大体可以分为三个不同的区域: 低温区, 发光强度基本不变或变化缓慢; 高温区, 发光猝灭很快, 强度直线下降, 其主要猝灭机构是各种非辐射复合中心, 本文不拟详细讨论. 在高温区和低温区之间有一个过渡区, 这段区域所对应的发光猝灭过程与激子的猝灭(离化)过程有关, 经简化处理, 不考虑高温段, 这时发光猝灭的温度关系可用下式表示:

$$I \propto \frac{A}{1 + B_0 e^{-E_1/KT}} \quad (2)$$

其中 $B_0 e^{-E_1/KT}$ 项表示激子的猝灭过程. 采用和实验数据拟合的方法可以得到 $E_1 = 8.5\text{meV}$ (2[#] 样品), 7.5meV (3[#] 样品) 和 6.5meV (1[#] 样品). 这三个值十分接近理论计算得到的激子束缚能. 图 5 中实线为实验数据, 拟合数据用不同形状的标记点表示. 比较图 5 和图 2, 可以看出由峰值移动和发光猝灭两种实验所得到的激子束缚能和热离化能是相当一致的.

本文的工作表明, 多量子阱材料发光的激子性质可以作为衡量材料质量、界面状况和多阱均匀性的重要标志, 而激子性质的直接表现就是温度特性. 高质量量子阱材料应在低温下具有窄的激子光谱线, 且在宽广的温度范围内保持激子发光特性, 即线宽随温度缓

同时包括上述两个机制. 上述分析有力地支持了我们对图 2 的实验结果作出的解释. 同时我们认为量子阱结构发光的上述温度特性可以用来定性判断晶体生长质量, 通常室温下的激子发光被认为是晶格完整、界面完好的一个重要标志. 事实上, 光谱研究表明, 2[#] 样品低温下谱线宽度将近 9meV, 同时有较强的杂质发光峰, 反过来也说明上述结论是正确的.

实验中我们发现量子阱发光谱线宽度随温度的变化与体材料相比有明显的差异, 如图 4 所示. 一般来说, 量子阱光谱的 FWHM 随温度变化比较缓慢, 这反映了发光的激子特性. 低温时, 光谱半宽增加很慢; 较高温度时, 由于载流子的热分布, 半宽增加变快. 图中所示 2[#] 样品当 $T > 150K$ 时, 半宽增加明显增快, 这是由于激子的热离化造成的, 这

慢变化、发光积分强度与激发强度呈线性关系。从激子发光到自由载流子复合发光可以从发光峰值位置与 GaAs 禁带宽度之间能量差的变化关系来鉴别,并由此可求出激子束缚能。量子阱中强的本征激子发光是它区别于体材料的根本特点之一,这主要是激子二维性所引起的变化^[9]。量子阱光电器件,例如量子阱激光器和光学双稳态器件的行为,尤其是室温下的实用性都取决于其激子性质。本文结果给出了选择供实用器件使用的量子阱材料的直接判断。

作者感谢黄昆教授对本工作的关心和指导。感谢孔梅影、孙殿照、陈宗圭等同志提供分子束外延样品。

参 考 文 献

- [1] R. Dingle, Proceedings of 13th International Conf. on Phys. of Semiconductors (North-Holland, Amsterdam), 965, (1976).
- [2] R. C. Miller, D. A. Kleinman, W. A. Nordland, Jr., and A. C. Gossard, *Phys. Rev.*, **B22**, 863(1980).
- [3] 徐仲英、葛惟镛, *物理*, **15**, 311(1986).
- [4] P. Dawson, G. Duggen, H. I. Ralph and K. Woodbridge, *Phys. Rev.*, **B28**, 7381(1983).
- [5] J. E. Fouquet and A. E. Seigman, *Appl. Phys. Lett.*, **46**, 280(1985).
- [6] R. C. Greene and K. K. Bajaj, *Solid State Communications*, **45**, 831(1983).
- [7] M. Tanaka, H. Sakaki, J. Yoshino and T. Furuta, *Surface Sciences*, **174**, 65(1986).
- [8] D. C. Reynolds, K. K. Bajaj, C. W. Litton, P. W. Yu, J. Singh, W. T. Masselink, R. Fischer, and H. Morokoc, *Appl. Phys. Lett.* **46**, 51(1985).
- [9] 黄昆, *物理*, **15**, 329(1986).

Investigation of Excitonic Properties and Temperature Behavior of the Photoluminescence from GaAs-GaAlAs Multiple Quantum Well Structures

Xu Zhongying, Liang Jiben, Xu Jizong, Zheng Baozhen, Li Yuzhang,
Xu Junying, Zeng Yiping and Ge Weikun

(Institute of Semiconductors, Academia Sinica)

Abstract

The detailed excitonic properties and temperature behavior of the photoluminescence from GaAs-GaAlAs multiple quantum well structures have been studied. MQW with high quality has been found to have narrow spectral lines at low temperature and keep excitonic luminescence properties in the wide temperature range of low temperature upto room temperature. The competition between electron-heavy hole recombinations from the narrower wells and that from the wider wells has been observed for the first time.