

匹配 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 量子阱材料的 GSMBE 生长及特性分析*

王晓亮 孙殿照 孔梅影 侯 洵¹ 曾一平

(中国科学院半导体研究所 北京 100083)

(¹中国科学院西安光学精密机械研究所 西安 710069)

摘要 在国产 CBE 设备上,用 GSMBE 方法首次在国内成功地生长出了具有不同阱宽(1~18nm)的高质量的 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 匹配量子阱结构材料.低温光致发光谱测试结果表明:量子阱材料发光谱峰强且锐,每个阱的激子跃迁峰清晰可辨.当阱宽大于 6nm 时,阱中激子跃迁能量的实验值与理论计算值符合得很好;当阱宽小于 6nm 时,实验值小于理论值;对阱宽相同的窄阱而言,我们样品的实验值高于 Tsang 的实验值.当阱宽小于 4nm 时,阱中激子跃迁谱峰的半高宽小于当量子阱界面起伏一个分子单层时所引起的展宽值,表明量子阱的界面具有原子级的平整度;与 1nm 阱相应的低温光致发光峰的半高宽为 21.6meV;7nm 阱对应的 PL 谱峰的半高宽为 5.9meV.

PACC: 8115G, 7280E, 6865; **EEACC:** 2520D, 0510D, 2530B

1 引言

$\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 匹配量子阱结构材料是一种非常重要的材料,利用此材料可以制备一系列光电子器件,如调制器^[1~3]、探测器^[4~7]、光波导及激光器^[8,9]等,这些光电子器件的工作波长范围为 1.3~1.55 μm .又由于 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 具有高的电子迁移率,因而这种材料也适合于制作高速微电子器件^[10,11].

自从 1983 年 Razeghi^[12]用 LP-MOCVD 方法首次生长了 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 匹配量子阱材料以来,人们用各种方法对这种材料系统的生长进行了研究,包括 LP-MOCVD^[13]、氢化物 VPE^[14]、氯化物 VPE^[15]、MBE^[16]、AP-MOCVD^[17~19]、GSMBE^[20,21]、CBE^[22]等方法,量子阱材料的质量得到不断改善. Bell 实验室的 Tsang^[22~24]首先用 CBE 方法生长出了高质量的 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 异质结构材料和匹配量子阱材料,到目前为止,世界上为数不多的研究小组达到了他的研究水平^[24~26].

GSMBE 技术的 III 族源和掺杂源用固态源, V 族源用气态源. 它吸取了 MBE 超高真空

* 国家“863”高技术计划资助项目

王晓亮 男,1963 年生,博士后,从事半导体微电子及光电子材料生长、物理及器件研究
孙殿照 男,1942 年生,研究员,从事半导体超薄微结构材料及器件生长及特性研究
1996 年 5 月 20 日收到初稿,1996 年 12 月 13 日收到修改稿

及 MOCVD 气态源的特点,解决了因磷的蒸气压太高而难以用 MBE 方法生长 InP 系材料的困难,而且大大延长了源的使用时间,减少了生长室因换源而暴露大气的次数,因而是一种很有前途的生长技术^[20,21,27]。

高质量的 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 材料较难生长,其原因如下:(1) 该种材料系统含有两种不同的 V 族元素,在生长过程中涉及到两种 V 族元素之间的切换;(2) $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 可以正失配、负失配或匹配地生长在 InP 衬底上,因此,必须准确控制组分以实现匹配生长;(3) 阱层 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 是三元合金材料,必须控制合金组分的均匀性以提高量子阱的质量。我们在国产 CBE 系统上,在国内首次用 GSMBE 方法成功地生长了 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 匹配量子阱材料。用低温光致发光谱对材料的特性进行了分析研究,把测试结果与理论计算结果和 Tsang^[23] 的 CBE 材料的低温光致发光结果进行了对比,说明了我们生长的材料具有较好的质量。

2 实验

生长匹配量子阱样品前,为了确保生长的量子阱与 InP 衬底匹配,我们用反射高能电子衍射 RHEED 对速率进行了校准。选 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 的生长速率为 1ML/s (0.293nm/s), InP 的生长速率为 0.53ML/s 。根据校准后的生长速率曲线确定出 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 与 InP 匹配时 In 束源炉温度及 Ga 束源炉的温度。衬底为掺 Fe 半绝缘(001)InP 衬底,衬底的清洁处理采用常规方法^[27]。经优化生长条件,选生长温度为 500°C , AsH_3 流量为 $8\sim 10\text{ sccm}$ 。

应用匹配生长条件,首先生长了 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 异质结构材料样品 EL156。在生长 EL156 时,先在 InP 衬底上生长了一层 250nm 的 InP 缓冲层,然后在该缓冲层上生长 $1\mu\text{m}$ 厚的 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 层。对异质结构样品 EL156 进行了 X 射线双晶衍射测量,低温和室温光致发光谱测量以及霍尔测量。

在生长好匹配 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 异质结构材料的基础上,我们生长了 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 匹配量子阱材料。为了从一次生长获得多个阱的信息,我们在单片衬底上生长了多个阱宽不同的量子阱。为了检验结果的可靠性,我们用同样条件生长了两个样品 EL166 和 EL167,并在每个样品上生长了一个 300nm 的 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 体材料参考层,以便于说明因量子尺寸效应引起的发光波长相对于体材料发光波长的蓝移效应。这两个样品的结构相似。图 1 给出了样品 EL166 的结构示意图。量子阱的垒宽均为 20nm ,以保证相邻阱间无相互作用。样品 EL166 上有 8 个阱,最窄阱宽为 1nm ,最大阱宽为 18nm 。样品 EL167 上有 7 个阱,最窄阱宽为 1nm ,最大阱宽为 15nm 。样品 EL166 上每个阱的宽度标于图 1 中。用匹配生长参数(该参数与 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 异质结构材料样品 EL156 的生长参数相同)进行生长,除 300nm 的 InP 缓冲层用手动控制生长外,其余部分均用计算机控制生长。为了改善界面的质量,采用了界面生长停顿和不对称切换方法。用低温光致发光谱对量子阱样品进行了分析研究。

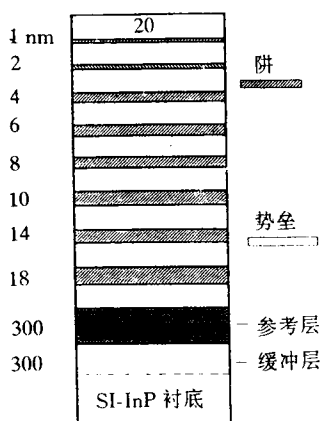


图 1 非等阱宽的 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 多量子阱样品 EL166 的结构示意图

光致发光测量以 He-Ne 激光器(632.8nm)作为激励光源, He-Ne 激光器的发射功率为 1.0mW. 光致发光经光栅单色仪、由液氮冷却的 Ge 探测器接收. 信号经锁相放大器放大后接收. 整个测量过程是用计算机控制的.

3 结果和讨论

3.1 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 异质结构样品

图 2 给出了样品 EL156 的 X 射线双晶衍射测量结果. 由图 2 可观察到两个衍射峰, 一个与 InGaAs 外延层相对应, 另一个与 InP 衬底相对应. 根据公式 $\Delta a_{\perp}/a_s = -\Delta\theta \cot\theta_s$, 可求出 InGaAs 外延层相对于衬底 InP 的失配度为 2.5×10^{-4} , 其中 a_s 为 InP 衬底的晶格常数, θ_s ($\theta_s = 31.7^\circ$) 为 InP 衬底的 (004) Bragg 衍射角, $\Delta\theta = 0.53$ 分. X 射线双晶测量结果表明, InGaAs 外延层与 InP 衬底匹配很好.

图 3 给出了样品 EL156 的 10K 和 300K 光致发光(PL)谱. 由图可知, 10K 时, 其峰值波长为 $1.5774\mu\text{m}$, 相应能量为 0.7861eV, 半峰宽 FWHM 为 9.2meV; 室温下峰值波长为 $1.627\mu\text{m}$, 相应能量为 0.7621eV, 半峰宽 FWHM 为 58.6meV.

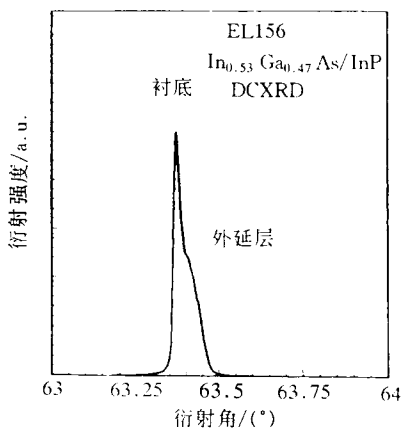


图 2 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 异质结构样品 EL156 的 X 射线双晶衍射测试结果

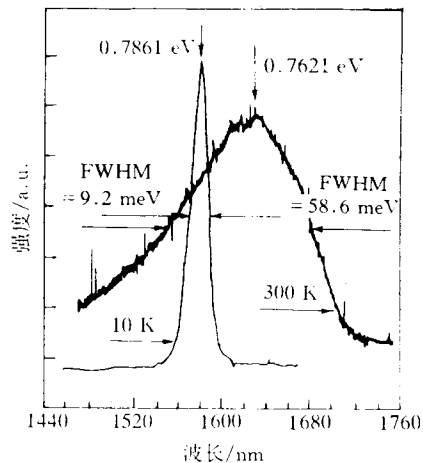


图 3 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 异质结构样品 EL156 的低温和室温光致发光谱测试结果

在室温下, 主要的跃迁过程是带-带跃迁. 在抛物带近似下, 并假定载流子的分布服从玻尔兹曼统计规律, 则带-带自发发射的线型由下式表示^[28]:

$$I(\hbar\omega) \sim (\hbar\omega - E_g)^{1/2} \exp[-(\hbar\omega - E_g)/kT] \quad (1)$$

由上式可知, 在谱线的低能侧, 随着 $\hbar\omega$ 的增加, 谱线强度按 $(\hbar\omega - E_g)^{1/2}$ 规律很快上升; 在谱线的高能侧, 随着 $\hbar\omega$ 的增加, 谱线根据 $\exp[-(\hbar\omega - E_g)/kT]$ 按指数规律较缓慢地下降. 谱线是不对称的. 当

$$\hbar\omega_{\max} = E_g + (1/2)kT \quad (2)$$

时, 谱线强度达到最大值. 其中 E_g 是室温禁带宽度; k 是玻尔兹曼常数; T 是绝对温度.

由图3可知,样品EL156在室温下的光谱线型是带-带跃迁线型.将由图3得到的室温下的峰值能量(0.7621eV)代入式(2)中,可求得 $E_g(300K)=0.749eV$,这正是 $In_{0.53}Ga_{0.47}As$ 在300K时的禁带宽度^[22].这一结果与EL156的X射线双晶衍射结果相一致,说明EL156的确是 $In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP$ 匹配异质结构材料,所用生长条件的确是匹配生长条件.

3.2 匹配 $In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP$ 量子阱结构材料

3.2.1 低温光致发光谱测试结果

图4给出了非等阱宽的多量子阱样品EL166的10K光致发光谱测试结果.由图4可以看到9个强而尖锐的发光峰,分别对应于8个 $In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP$ 量子阱和一个 $In_{0.53}Ga_{0.47}As$ 参考层.从EL167的低温光致发光谱图上,可以看到8个强且锐的发光峰,分别对应于7个 $In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP$ 量子阱和一个 $In_{0.53}Ga_{0.47}As$ 参考层.发光峰强且锐,峰与峰可清晰分辨,显示了样品生长的成功和样品具有较高的质量.

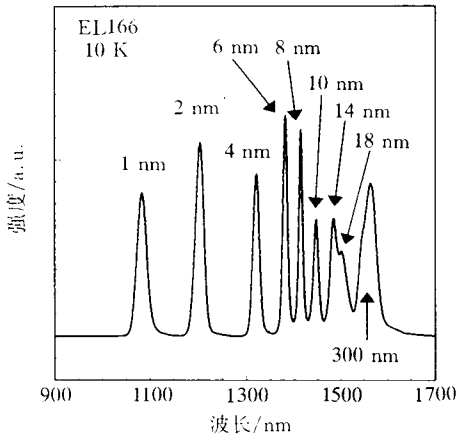


图4 样品EL166的10K光致发光谱测试结果

3.2.2 匹配量子阱中的激子跃迁能量

图5给出了量子阱中的激子跃迁能量随阱宽变化的曲线.其中,实线是根据有限深势阱模型^[29]计算得到的理论曲线(10K温度时),认为激子发光对应于量子阱中的重空穴激子(1E-1HH),有关参数取自文献^[29].空心方框是Tsang^[22~24]的CBE样品的测试结果,空心圆圈是我们的EL166样品的测试结果,实心圆点是

EL167样品的测试结果.

由图5可以看出,匹配量子阱中的激子跃迁能量是随着阱宽的变化而变化的.随着阱宽减小,量子阱中激子跃迁能量增大;阱宽越小,激子跃迁能量随阱宽减小增加的速率越大.这说明阱越窄,量子尺寸效应越明显;阱越窄,激子跃迁能量的变化随阱宽的变化越灵敏.由图5还可以看出,当阱宽从1nm增大到18nm时,量子阱中激子的跃迁能量(波长)从1.149eV(1079nm)下降(增加)到0.822eV(1508nm).当阱宽大于6nm时,我们的结果和Tsang^[22~24]的结果均与理论计算结果符合得很好;当阱宽小于6nm时,我们的结果和Tsang^[22~24]的结果均小于理论值,阱宽比6nm小得越多,理论值与实验值偏差越大.另外,由图还可以看出,当阱宽小于6nm时,对相同的阱宽,我们的实验结果与Tsang^[22~24]的实验结果相比,我们的结果更接近于理论值,即对窄阱而言,我们观察到的量子

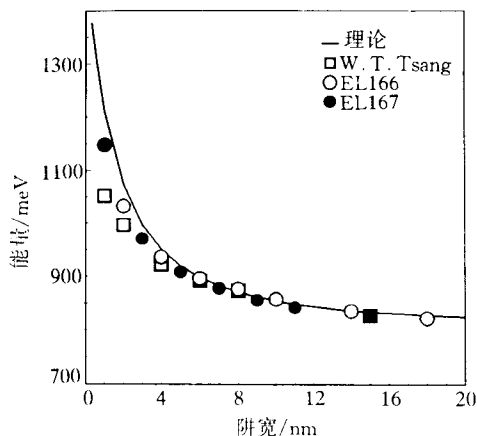


图5 低温(10K)下 $In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP$ 量子阱中激子跃迁能量随阱宽的变化曲线

尺寸效应更明显.

3.2.3 匹配量子阱中的激子在 10K 时跃迁谱峰的半高宽

图 6 给出了量子阱谱峰半高宽与阱宽的关系曲线. 实线表示当量子阱界面起伏(两个界面的总起伏)一个分子单层(0.293nm)时所引起的谱峰展宽的理论计算值, 空心圆点表示对 EL166 的测试结果, 实心圆点表示对 EL167 的测试结果. 由图可见: 当阱宽小于 4nm 时, 两个样品的实验值均小于理论值; 当阱宽大于 4nm 时, 实验值大于理论值; 当阱宽大于 8nm 时, 随着阱宽的增加, 半峰宽有增加的趋势; 当阱宽为 1nm 时, 对 EL166, 其 FWHM = 26.9meV; 对 EL167, FWHM = 21.6meV; EL166 的最小 FWHM 为 5.6meV, 相应阱宽为 10nm; 对 EL167, 最小 FWHM 为 5.9meV, 相应阱宽为 7nm; 当阱宽大于 2nm 时, 两个样品的实验值基本一致.

下面, 我们对低温下量子阱材料中光致发光谱的展宽机理作一简要分析, 以解释上面观察到的一些实验现象.

在量子阱中, 激子跃迁的光谱线宽由均匀线宽和不均匀线宽迭加而成. 根据文献[30], 光谱的均匀线宽可以表示为:

$$\Gamma_h = \Gamma_A T + \Gamma_o / [\exp(\hbar\omega_o/kT) - 1] \quad (3)$$

式中 Γ_A 、 Γ_o 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, $\hbar\omega_o$ 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.

不均匀线宽主要是下列因素的影响:

- (1) 电离杂质与激子相互作用引起的杂质展宽;
- (2) 单量子阱界面不平整引起的展宽;
- (3) 等阱宽的多量子阱材料中不同阱层之间的厚度张落产生的展宽;
- (4) 合金中合金组分无序引起的展宽.

在上述诸展宽因素中, 仅仅杂质展宽与温度有关^[30], 杂质展宽可以表示为

$$\Gamma_B = B \exp(-\langle E_B \rangle / kT) \quad (4)$$

其中 $\langle E_B \rangle$ 是杂质的束缚能. 对未有意掺杂的材料, 杂质展宽可以忽略.

样品 EL166 及 EL167 是非等阱宽的多量子阱样品, 样品中未有意掺杂, 阱层与垒层晶格匹配, 光致发光谱的测量是在低温下进行的, 且每一谱峰对应一个给定阱宽的量子阱, 因此, 对每一个谱峰, 其光谱展宽因素主要是上述因素中的(2)和(4), 即单量子阱界面不平整引起的展宽和合金组分无序引起的展宽.

在宽阱中, 激子的波函数主要局限在阱内, 而阱层 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 是三元合金半导体材料, 因此, 在宽阱中合金组分无序引起的展宽是主要的展宽因素. 同样, 在体材料中, 主要的展宽因素也是合金无序引起的展宽.

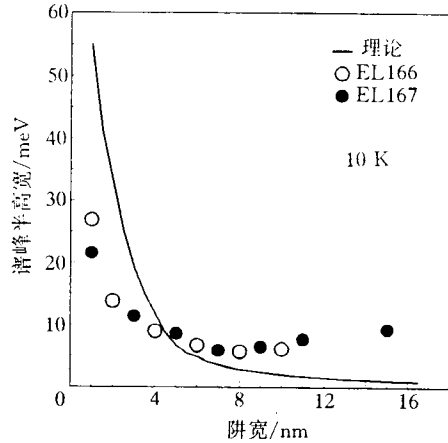


图 6 低温(10K)下 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 量子阱中激子跃迁谱峰半高宽随阱宽的变化

如果假定载流子均匀分布在半导体中,即载流子不择优占据晶体中的低能量状态,则由于合金原子无规张落所导致的激子 PL 谱的半峰宽约为 $\Delta E_{exc} = 1.6\text{meV}$ ^[23]. 在我们的样品中,宽阱和体材料的 FWHM 都大于 1.6meV ,这说明还存在着其它的展宽机制. 这一其它的展宽机制就是合金组分的宏观不均匀性. 当阱宽大于 8nm 时,随着阱宽的增加,半峰宽有增加的趋势,这是由合金组分的宏观不均匀性和微观不均匀性共同引起的. 因为当阱宽增加时,激子波函数局限于阱中的几率增大,因而受合金组分不均匀性散射的几率也增大. 合金组分的宏观不均匀性引起的展宽是非本征展宽,它依赖于生长条件和设备性能,如束流的稳定性、衬底温度的均匀性、生长温度、 V/Γ 比等. 对于给定的设备,通过优化生长条件,把组分的宏观不均匀性引起的展宽降到该设备所能达到的最低限度是可能的.

其次讨论窄阱中激子光致发光谱的半峰宽. 低温下,对于窄阱而言,光谱的主要展宽机制是量子阱界面不平整引起的展宽. 由图 6 可知,实验测得的半峰宽小于界面起伏一个单层时理论计算的展宽值. 这一结果说明,我们生长的量子阱样品的界面起伏小于一个分子单层,即界面达到了原子级的平整度.

4 结 论

在国产 CBE 设备上,用 GSMBE 方法成功地生长出了高质量的非等阱宽($1\sim 18\text{nm}$)的 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 匹配量子阱结构材料. 用低温光致发光谱对材料的特性进行了分析研究. 在 10K 温度下,量子阱材料低温光致发光谱峰强且尖锐,每个阱的激子跃迁发光峰清晰可辨. 当阱宽大于 6nm 时,量子阱中激子跃迁能量的实验值与理论值符合得较好;当阱宽小于 6nm 时,实验值小于理论值;对阱宽相同的窄阱而言,我们得到的实验值高于 Tsang 的实验值. 最窄阱宽为 1nm ,相应的低温光致发光谱半高宽为 21.6meV . 7nm 阱对应的 PL 谱峰的半高宽为 5.9meV . 量子阱界面起伏小于一个原子单层.

致谢 感谢林兰英院士的关怀和鼓励. 中国科学院半导体所的王玉田副研究员对样品进行了 X 射线双晶衍射测试,徐仲英研究员、袁之良博士对样品进行了光致发光谱测试,在此,向他们表示感谢.

参 考 文 献

- [1] D. P. R. Guy *et al.*, IEEE Proc., 1989, **J136**: 46.
- [2] T. H. Wood *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1984, **44**: 16.
- [3] E. G. Scott *et al.*, J. Cryst. Growth, 1990, **105**: 249.
- [4] H. Temkin *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1985, **47**: 394.
- [5] J. Kovac *et al.*, J. Cryst. Growth, 1993, **126**: 151.
- [6] H. Temkin *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1986, **49**: 859.
- [7] S. D. Gunapala *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1991, **58**: 2024.
- [8] W. T. Tsang *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1991, **59**(19): 2375.
- [9] W. T. Tsang *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1991, **58**(23): 2610.
- [10] Y. K. Chen *et al.*, IEEE EDL, 1989, **10**: 267.

- [11] R. N. Nottenburg *et al.*, IEEE EDL, 1989, **10**: 30.
- [12] M. Razeghi *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1983, **43**(6): 585.
- [13] M. Razeghi *et al.*, J. Cryst. Growth, 1984, **70**: 145.
- [14] M. A. Digiuseppe *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1983, **43**: 906.
- [15] K. Kodama *et al.*, J. Vac. Sci. Technol., 1983, **B1**: 696.
- [16] J. H. Marsh *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1985, **46**: 1161.
- [17] M. S. Skolnick *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1986, **48**: 1455.
- [18] M. S. Skolnick *et al.*, Semicond. Sci. Technol., 1986, **1**: 29.
- [19] B. I. Miller *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1986, **49**: 1384.
- [20] H. Q. Hou *et al.*, J. Cryst. Growth, 1992, **120**: 167.
- [21] T. P. Chin *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1991, **58**: 254.
- [22] W. T. Tsang *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1986, **49**: 220.
- [23] W. T. Tsang, J. Cryst. Growth, 1987, **81**: 261.
- [24] W. T. Tsang, J. Crystal Growth, 1990, **105**: 1~29.
- [25] D. Grutzmacher, J. Crystal Growth, 1991, **107**: 520~530.
- [26] P. J. A. Thijs *et al.*, J. Cryst. Growth, 1991, **107**: 731~740.
- [27] 孙殿照, 王晓亮, 等, 半导体学报, 1995, **16**(10): 725~729.
- [28] T. P. Pearsall, GaInAsP Alloy Semiconductors (John Wiley & Sons), 1982, 318.
- [29] D. Gershoni, H. Temkin and M. B. Panish, Phys. Rev. B, 1988, **38**(11): 7870.
- [30] J. Lee *et al.*, Phys. Rev. B, 1986, **33**: 5512.

GSMBE Growth and Characterization of $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ Quantum Wells

Wang Xiaoliang, Sun Dianzhao, Kong Meiyang, Hou Xun¹ and Zeng Yiping

(Institute of Semiconductors, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083)

(¹ Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710068)

Received 20 May 1996, revised manuscript received 13 December 1996

Abstract By using a home-made GSMBE system, high quality $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ quantum wells having different well widths (1~18nm) and lattice-matched to (001) InP substrate have been achieved for the first time in China. Sharp and intense photoluminescence (PL) peaks for each well can well resolved in the 10K PL spectra. For wells larger than ~6nm, the exciton energies are in good agreement with those of calculation. For wells narrower than 4nm, our line widths at 10K are bellow the theoretical values of line width broadening due to one monolayer interface fluctuation, showing that the interface fluctuation of our sample is within one monolayer.

PACC: 8115G, 7280E, 6865; **EEACC:** 2520D, 0510D, 2530B