

组合注入质子导致不对称耦合双量子阱 界面混合效应研究*

缪中林¹⁾²⁾ 陈小平¹⁾²⁾ 蔡炜颖¹⁾ 李志锋¹⁾²⁾ 袁先漳¹⁾ 刘平¹⁾ 史国良¹⁾ 徐文兰¹⁾ 陆卫¹⁾
陈昌明²⁾ 朱德彰²⁾ 潘浩昌²⁾ 胡军²⁾ 李明乾²⁾

¹⁾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)

²⁾中国科学院上海原子核研究所核分析技术开放实验室,上海 201800)

(2000年6月3日收到,2000年7月13日收到修改稿)

用分子束外延系统(MBE)生长了GaAs/AlGaAs不对称耦合双量子阱(ACDQW),采用组合注入质子的方法,在同一块衬底上获得了不同注入剂量的GaAs/AlGaAs不对称耦合双量子阱单元,没有经过快速热退火的过程,在常温下测量了不同注入剂量量子阱单元的显微光荧光谱和光调制反射光谱,发现了各区域子带间跃迁能量最大变化范围达到81 meV.由于样品未作高温热退火处理,为此由Al组分误差函数模型推导的扩散长度要大大高于扩散系数公式.耦合量子阱的界面混合效应对质子注入非常敏感.

关键词:不对称耦合双量子阱(ACDQW)组合注入,显微光荧光谱,光调制反射光谱,界面混合

PACC:7320,7360,7865 A280

1 引 言

基于量子阱中子带间跃迁的光电器件如长波长红外探测器、激光器、波导器件等已经研究的很多,并且发展迅速.制造这类器件过程中一个关键技术就是对材料进行后处理,按照实际需要改变材料的能带结构,通过界面混合的方法来调节器件的能级位置、光吸收、折射率及迁移率等.实现这种界面混合效应的技术手段,有激光诱导^[1-3],缺陷诱导^[4-6],离子注入诱导等^[7,8].一般意义上来说,离子注入以后再快速热退火能有效地改变能带结构,所以目前应用比较广泛.但是在我们的实验中,发现只进行离子注入没有热退火也能有效地改变一种非对称耦合双量子阱的能带结构.非对称耦合双量子阱(ACDQW)近年来引起人们浓厚研究兴趣^[9-13],当两个量子阱之间的势垒层厚度接近或小于德布罗意波长的时候,由于电子波函数的耦合会产生一些有趣的特性,比如,在非对称量子阱中可以观察到单个对称量子阱中禁戒的子能带间跃迁^[14].

我们用组合注入^[15]的方法在同一块材料上不同区域注入不同剂量的质子,获得了子带间跃迁能

量最大变化达81 meV的量子阱发光区域.研究了不同剂量质子注入对量子阱发光峰位的影响.

2 实 验

本实验所用的样品是用分子束外延(MBE)技术在GaAs(001)衬底上生长的,生长温度为610℃.生长以前,在预处理室中,分别于150℃,260℃和370℃除气5 min,真空度保持在 133×10^{-9} Pa以上.再送入生长室,在富As条件下于640℃脱氧15 min,真空度保持在 133×10^{-8} Pa以上.为了减小应变和缺陷,衬底脱氧后先生长了500 nm的缓冲层,再生长50 nm $Al_{0.53}Ga_{0.47}As$ 势垒层,然后依次为3 nm GaAs势阱层,2 nm AlAs势垒,7 nm GaAs势阱,50 nm $Al_{0.53}Ga_{0.47}As$ 势垒层,最后是20 nm GaAs表面保护层.外延生长在量子阱和垒的界面处都中断10 s,以便使界面恢复得更平整,外延生长的速率和Al的组分由RHEED振荡来测定.样品结构如图1所示.

生长好的样品在室温下用加掩膜板的方法进行质子注入.掩膜板是两块厚度为0.5 mm的Al板,其中一块为固定掩膜板,其上分布有直径为2 mm、

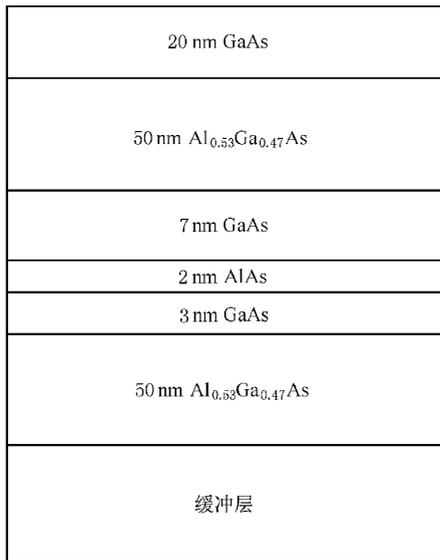


图1 样品结构

中心间距为 3 mm 的小孔列阵,在注入过程中,这块掩模板与样品接触并且保持不动.另外一块表面无图案的掩模板在注入过程中顺序移动使得固定掩模板上的小孔逐行暴露在离子束中,以获得 $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, $5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ 几种不同的注入剂量.注入质子的能量为 40 keV,选择这样的注入能量,目的是使质子注入的分布峰处于耦合量子阱中的 AlAs 势垒层上.由于注入而引起的样品温度升高约为 $150 \text{ }^\circ\text{C}$.典型的引入缺陷的方法是先离子注入,然后对样品进行快速热退火.而我们现在不经过热退火,研究直接由于质子注入引入缺陷而导致的界面混合效应.在室温下测量光致荧光谱(PL)和光调制反射光谱(PR)来研究样品的能带间复合跃迁性质.

光致荧光谱是在 Dilor-INFINITY 显微拉曼/荧光光谱仪上于室温条件下测量的,激发光源为氩离子激光器的 514.5 nm 线.曝光时间 5 s,叠加 2 次.用 100 倍的显微物镜,分辨率足以达到在空间上进行逐点扫描.光调制光谱的探测光源为溴钨灯,调制光为 He-Ne 激光器的 632.8 nm 线,通过单色仪分光后由硅光二极管探测器探测,探测光斑直径小于 2 mm.探测信号由锁相放大器放大后经过 A/D 转换由计算机记录.

3 结果及讨论

$\text{Al}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 是间接能带结构,最低的导带是

X 能谷,距离 GaAs 导带底 0.386 eV ,而第一激发 Γ 电子子带距 GaAs 导带底 0.217 eV ,大大小于 X 能谷势垒.所以在我们的研究中为简单起见,忽略了 Γ -X 界面混合效应对电子之能级的影响,对于组分 $x = 0.53$ 的 $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 体系仍然采用直接带隙(Γ 能谷)为势垒^[16],导带带阶取为 0.6,势阱和势垒的宽度取生长过程中 RHEED 监控得到的值.为此在不作任何参数调节情况下采用有效质量近似理论可算得第一重空穴子带到第一电子子带的跃迁峰能量(hh1-e1)为 1.498 eV ,第一轻空穴子带到第一电子子带的跃迁峰能量为(1h1-e1) 1.527 eV ,同样 hh2-e2 为 1.639 eV .

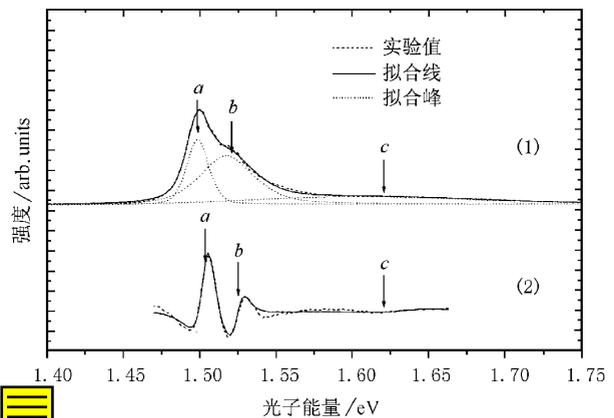


图2 没有注入质子之前耦合量子阱的光荧光谱和光调制反射光谱(1)光荧光谱(2)光调制反射光谱 虚线为实验谱线,实线为拟合曲线,点线为三个拟合峰 a, b, c

图2为样品没有注入质子之前的 PL 谱和 PR 谱,虚线为实验谱线,实线为拟合结果,点线为拟合峰.从 PL 谱中,可得到三个跃迁峰的值分别为 1.499 , 1.518 和 1.605 eV .用三阶微分 Lorentz 线形拟合 PR 谱,也得到峰位相似的三个峰,其峰位分别为 1.504 , 1.525 和 1.623 eV .PR 谱的各子带跃迁峰位与 PL 谱的子带跃迁峰位基本相同.所得的实验值与有效质量模型预计的 hh1-e1, 1h1-e1, hh2-e2 的跃迁能量理论值也较符合,如表 1 所示.

表1 耦合量子阱各子带间跃迁峰的能量
(理论值,PL 拟合结果,PR 拟合结果)

子带跃迁	理论值/eV	PL 谱拟合结果/eV	PR 谱拟合结果/eV
hh1-e1	1.498	1.499	1.504
1h1-e1	1.527	1.518	1.525
hh2-e2	1.639	1.605	1.623

注入质子以后引起跃迁峰位移动如图 3 所示,

a 为没有注入之前的 PL 谱, *b, c, d, e* 分别为注入质子剂量 $5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$, $5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$, $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$, $5 \times 10^{15} \text{cm}^{-2}$ 时的 PL 谱. 从图中可以看到, 1.42 eV 处为 GaAs 的基本带间跃迁. 随着注入剂量的增加, 可以明显地看到子带间跃迁峰向高能方向移动, 并且峰形逐渐展宽. 从 *e* 中看到, 当注入剂量达到 $5 \times 10^{15} \text{cm}^{-2}$ 时, 复合发光峰淬灭. 从图 4 的光调制反射光谱中也可以得到相同的结果, 高能方向约 1.78 eV 处可以看到 GaAs 来自量子阱的自旋轨道分裂价带到导带的跃迁 $E_g + \Delta$, 该跃迁峰在注入过程中位置几乎不变, 在低能 1.42 eV 附近为 GaAs 的基本带间跃迁, 呈现出 Franz-Keldysh 振荡. 拟合结果如表 2 所示.

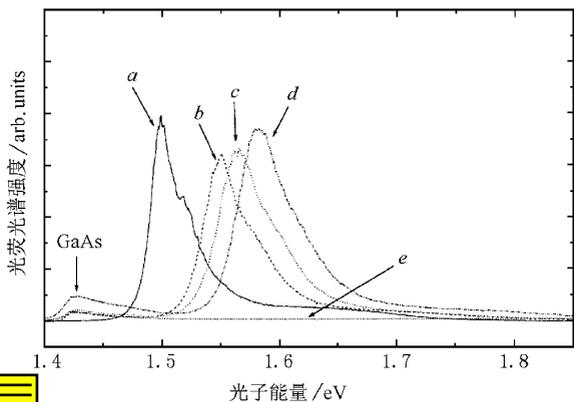


图 3 组合注入不同浓度的质子以后的光荧光谱 (a) 无 (b) $5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$ (c) $5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ (d) $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ (e) $5 \times 10^{15} \text{cm}^{-2}$

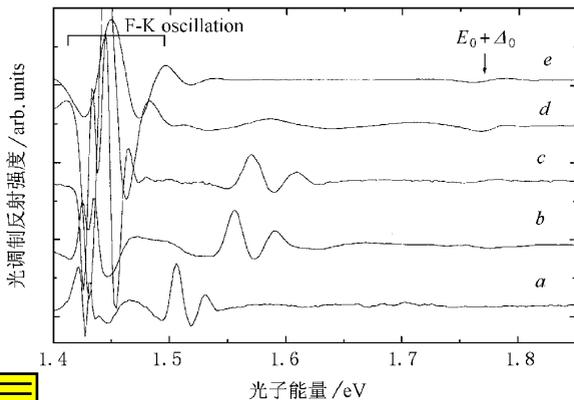


图 4 组合注入不同浓度的质子以后的光调制反射光谱 (a) 无 (b) $5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$ (c) $5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ (d) $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ (e) $5 \times 10^{15} \text{cm}^{-2}$

如表 2 所示, 对于注入质子剂量 $5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$, $5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ 和 $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$, hh1-e1 的跃迁能量分别蓝移了 49 meV, 64 meV 和 81 meV. 我们沿用通

表 2 注入不同浓度质子后光荧光谱和光调制反射光谱的拟合结果

注入 H ⁺ 浓度/cm ⁻²	无	5×10^9	5×10^{11}	5×10^{13}	5×10^{15}
hh1-e1	1.499	1.548	1.563	1.580	淬灭
PL					
1h1-e1	1.518	1.567	1.581	1.603	淬灭
hh2-e2	1.605	1.667	1.674	1.687	淬灭
PR					
hh1-e1	1.504	1.553	1.570	1.572	淬灭
1h1-e1	1.525	1.561	1.594	1.590	淬灭
hh2-e2	1.623	1.635	1.658	1.683	淬灭

常的界面混合中扩散模型, 则势垒与势阱中的 Al 组分可用误差函数来计算, 误差函数为^[17]

$$X(z) = X_0 \left\{ 1 - \frac{1}{2} \left[\operatorname{erf} \left[\frac{L_z + 2z}{4L_d} \right] + \operatorname{erf} \left[\frac{L_z - 2z}{4L_d} \right] \right] \right\} \dots \quad (1)$$

其中 X 为 Al 组分, L_d 为扩散长度, $L_d = (Dt)^{1/2}$, $D = D_0 \exp(-\Delta E/kT)$ 为扩散系数 ($D_0 = 10^7 \text{cm}^2/\text{s}$, $\Delta E \approx 5.6 \text{eV}$)^[18], t 是退火时间. 通过与有效质量模型结合, 根据跃迁能量蓝移的量可计算得 Al 组分的扩散长度分别为 0.9 nm, 1.05 nm 和 1.08 nm, 对应于 $5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$, $5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ 和 $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$. 根据 $L_d = (Dt)^{1/2}$, 对于样品的质子注入过程中有 150 °C 的自加热温度, 退火时间不超过 10 h, Al 组分的扩散长度也只在 10^{-3}nm 的数量级, 不会导致能级的移动. 但是我们观察到了比较大的跃迁能量的移动, 能量移动最大达 81 meV. 由 Al 组分误差函数模型推导的扩散长度要大于扩散系数公式所得的计算值, 导致这样的结果可能是与耦合量子阱中间存在 Al 组分比较高的 AlAs 势垒层以及该层中有较高浓度质子有关.

在质子注入的过程中, 尽管自加热温度较低, 但在此温度环境下 III 族原子或空位获得能量已开始相互扩散, 经过扩散以后, Ga 原子与 Al 原子, Ga 空位与 Al 空位互换, Al 原子在界面上的分布不再陡峭, 导致势阱和势垒的组分发生了变化, 如图 5 所示, 势阱由原来的方形势阱转为由误差函数决定的形状. 注入以后, 原来的在势阱中的低能级抬高, 而高能级降低. 在本文的试验谱中表现的是低能级之间的跃迁情况, 所以随着注入剂量的增加, 受限态跃迁峰向高能方向移动.

由于注入而引起的缺陷, 导致量子阱中电子能级散射增强, 所以展宽因子增加, 峰形变宽. 随着注入剂量增加, 由于注入而引起的缺陷使参与发光的自由激子的数量减少, 注入剂量越大, 这种效应越明

显,所以当剂量达到 $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ 时,在光荧光谱中可以看到复合发光峰发生淬灭。质子注入引起的缺陷使材料中载流子的迁移率能力大大下降,为此光调制中光生载流子通过向表面与界面迁移构成空间电场能力也随之下降,从而导致了随着注入剂量的增加调制光谱结构的强度下降,最终来自量子阱中的跃迁峰消失。

4 结 论

用 MBE 方法生长了 GaAs/AlGaAs 不对称耦合双量子阱,采用组合注入的方法注入了不同浓度的质子,在同一块样品上得到不同注入浓度的区域。没有经过快速热退火,光荧光谱和光调制反射光谱表明不同区域间子带跃迁能量最大变化达 81 meV,说明了实际 Al 组分的扩散长度要大大高于扩散系数的计算值。

- [1] D. Kirillov *et al.*, *J. Appl. Phys.* **55** (1984) ,1105.
 [2] J. E. Epler *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **49** (1986) ,1447.
 [3] J. Ralston *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **50** (1987) ,1817.
 [4] W. D. Laidig *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **38** (1981) ,776.
 [5] M. D. Camras *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **42** (1983) ,185.
 [6] K. Meehan *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **45** (1984) ,549.
 [7] P. Gavrilovic *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **47** (1985) ,130.
 [8] Y. Hirayaman *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **24** (1985) ,1498.
 [9] Y. W. Suen *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992) ,1379.
 [10] K. Moon *et al.*, *Phys. Rev.* **B51** (1995) ,5138.
 [11] H. Akera *et al.*, *Physica* **B201** (1994) ,225.
 [12] R. J. Radtke *et al.*, *Phys. Rev.* **B54** (1996) ,13832.
 [13] Y. Takagaki *et al.*, *Physical Review* **B56** (1997) ,1057.
 [14] X. D. Xiang *et al.*, *Science* **268** (1995) ,1738.
 [15] Adachi, *J. Appl. Phys.* **58** (1985).
 [16] X. Q. Liu, COMMAD, 1416 Dec., 1998, Perth, Australia 458.
 [17] E. Herbert Li *et al.*, *Phys. Rev.* **B46** (1992) ,15181.
 [18] J. Cibert *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **49** (1986) ,223.

ASYMMETRICAL COUPLING DOUBLE QUANTUM WELL INTERMIXING INDUCED BY COMBINATORIAL PROTON IMPLANTATION*

MIAO ZHONG-LIN¹⁾²⁾ CHEN PING-PING¹⁾²⁾ CAI WEI-YING¹⁾ LI ZHI-FENG¹⁾²⁾ YUAN XIAN-ZHANG¹⁾
 LIU PING¹⁾ SHI GUO-LIANG¹⁾ XU WEN-LAN¹⁾ LU WEI¹⁾ CHEN CHANG-MING²⁾ ZHU DE-ZHANG²⁾
 PAN CHANG-HAO²⁾ HU JUN²⁾ LI MING-QIAN²⁾

¹⁾ National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

²⁾ Laboratory of Nuclear Analysis Techniques, Shanghai Institute of Nuclear Research, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

(Received 3 June 2000 ; revised manuscript received 13 July 2000)

ABSTRACT

With combinatorial proton implantation, we obtained several areas with different implantation doses in single wafer of GaAs/AlGaAs asymmetry coupling double quantum well grown by MBE, and studied the optical characteristics with photoluminescence (PL) and photo-modulated reflectance (PR). Without rapid thermal annealing, maximum transition energy shift 81 meV was obtained in single wafer. The diffusion lengths of Al component calculated from error function were larger than that calculated from coefficient of diffusion formula. The interface effect of double quantum well is sensitive to proton implantation.

Keywords: Asymmetry coupling double quantum well (ACDQW), Combinatorial implantation, Photoluminescence, Photo-modulated Reflectance, Intermixing

PACC: 7320, 7360, 7865, 4280