## $GaAs_{1-x}Sb_x/GaAs$ 单量子阱的光学特性研究\*

罗向东<sup>1</sup><sup>\*</sup> 边历峰<sup>1</sup> 徐仲英<sup>1</sup>

**罗海林<sup>2</sup>) 王玉琦<sup>2</sup>) 王建农<sup>2</sup>) 葛惟琨<sup>2</sup>** (中国科学院半导体研究所超晶格国家重点实验室,北京 100083)

<sup>2</sup>(香港科技大学物理系,香港)

(2002年9月9日收到 2002年12月10日收到修改稿)

用选择激发光荧光研究了分子束外延生长的 GaAsSb/GaAs 单量子阱的光学性质,第一次同时观察到空间直接 ( [ 类 )和间接 [] 类 )跃迁.它们表现出不同的特性: [ 类跃迁具有局域化特性,其发光能量不随激发光能量而变; [] 类发光的能量位置随激发功率的增大而蓝移,也随激发光能量的增加而蓝移,复合发光发生在位于异质结 GaAs 一侧的电子和 GaAsSb 中的空穴之间,实验结果可以很好地用电荷分离造成的能带弯曲模型来解释,这也是空间间 接跃迁的典型特性.还用光荧光的激发强度关系和时间分辨光谱进一步论证了 GaAsSb/GaAs 能带排列的 [] 类特性, 并通过简单计算得到了应变和非应变状态下 GaAsSb/GaAs 异质结的带阶系数.

关键词:GaAsSb/GaAs,选择激发, [[ 类跃迁 PACC:7320D,7847

GaAsSb 是一种重要的光电子器件材料 改变 Sb 的含量 GaAsSb 的带隙可以覆盖整个近红外波段, 使它有可能在光通讯领导中得到广泛应用,相应 LED ,LD 和 VCSEL 器件已研制成功<sup>[12]</sup>.此外,就材 料特性而言  $GaAs_1_*Sb_*/GaAs$  异质结有两个重要的 性质:一个是由晶格常数不同造成的应变特性,另一 个则是由能带交错排列产生的独特电学和光学特 性<sup>[3-5]</sup>.近年来,人们已在 GaAs1-, Sb<sub>2</sub>/GaAs 异质结 基本物理特性研究上做了大量工作,特别是其能带 排列的研究,理论上主要有两种模型,固体模型理论 预测 GaAsSb/GaAs 异质结在 Sb 含量 > 41% 转变为 Ⅱ类排列<sup>6]</sup> :而经验方法则认为在所有 Sb 含量均为 Ⅱ类排列,并且认为引起这一变化的主要因素是价 带<sup>7]</sup>.与此同时,不同实验结果得出截然不同的带阶 排列, Ji 等人以及 Peter 等人的结果认为 GaAsSb/ GaAs 具有明显的 [] 类特征<sup>[8,9]</sup>,而 Prins 等人的压力 实验结果则认为它完全具有 | 类排列特征[10].本文 用选择激发光荧光,并结合单光子计数技术等实验 手段研究了 GaAsSb/GaAs 的发光特性,特别是在选 择激发光谱中同时观测到了两类发光,实验结果清 楚表明,GaAsSb/GaAs 异质结具有 Ⅱ类排列的能带 结构.我们还根据实验结果,结合理论计算,得到了 应变和非应变条件下 GaAsSb/GaAs 的价带带阶 参数.

本文所研究的 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub>/GaAs 单量子阱样品 用分子束外延生长技术生长,用(100)GaAs 作衬底. 生长过程中 Ga 源和 As 源的温度分别为 960 和 600℃ Sb 源的生长温度为 390—430℃.一共 4 个样 品,它们的阱宽都一样,即 6.5nm,只是 Sb 含量不 同,分别为 16%(样品 A),18%(样品 B),21%(样品 C)和 26%(样品 D).在光荧光测量过程中,我们用 514.5nm 或稳态掺钛蓝宝石激光器所产生的激光来 激发样品,而在单光子计数测量过程中是用掺钛蓝 宝石激光器所产生的脉冲激光来激发,荧光衰退过 程则用多通道分析器记录.

为了研究 GaAsSb/GaAs 量子阱光跃迁的来源以 及它的发光特性,测量了不同温度和不同激发强度 下的光荧光谱.图1给出样品 C 在不同激发强度下 的荧光光谱以及光谱积分强度与激发强度的关系. 由图1可以看出,随激发强度的增大,发光峰迅速蓝

<sup>†</sup> E-mail xdluo@red.semi.ac.cn

<sup>\*</sup> 国家重点基础研究专项基金(批准号: G001CB3095),国家自然科学基金(批准号: 19974045)及中国科学院纳米科学与技术项目资助的 课题.

移并且展宽.光谱积分强度与激发强度的关系画在 双对数坐标上,可以清楚地看到,两者呈线性关系, 斜率为1.实验发现,在几个数量级的激发强度内, 没有出现荧光饱和现象.光谱积分强度与激发强度 的关系通常可以用 I<sub>PL</sub> = C × P<sup>\*</sup> 来描述,不同的发



图 1 12K 温度下样品 C 的积分强度随激发强度的变化关系 内插图示出不同激发强度下的 PL 谱

光机理可以有不同的  $\alpha$  值  $\alpha = 1$ 表示样品发光主要 是激子复合发光.因此我们的结论是 GaAsSb/GaAs 量子阱在低温下是以本征激子复合发光为主,这一 特性对于后面讨论光谱移动很重要,说明我们研究 的发光具有本征特性.

图 2 为样品 C 在低温下荧光峰值能量随激发强 度的变化关系,很明显,激发强度越大峰值能量蓝移 的速率越快,这种变化近似可以分为两个区域;在激 发强度小于 3mW 时 峰值能量蓝移量约为每个数量 级 4meV 而在激发强度大于 3mW 时 峰值能量移动 约为每个数量级 12.5meV,远远大于 4meV.这一特 征曾在 GaInP/GaAs 异质结中报道过,并认为是典型 的Ⅱ类跃迁特性<sup>11〕</sup>其发光峰能量随激发强度异常 蓝移是由于能带弯曲和能带填充两个效应共同作用 造成的,在 || 类能带排列情况下,光激发产生的电子 会聚集在异质结界面 GaAs 一侧,而空穴主要位于 GaAsSb 层内 参与发光跃迁的电子和空穴在空间上 是分离的.由于电子、空穴在空间上分离,因此在 GaAsSb/GaAs 界面附近会形成电场,并使异质结能 带发生弯曲,形成了类似于三角势阱的形状(见图2 内插图),这与二维电子气十分类似.因此,GaAsSb/ GaAs 量子阱发光激发强度越大,能带弯曲就越厉



图 2 样品 C 的荧光峰位随激发强度的变化关系 内插图为能带示意图

害 相应能级就提高,其结果是发光峰能量增加,发 光蓝移.光激发强度进一步增大时,电子和空穴能级 位置会超过费米能级,出现能带填充效应,从而进一 步增加了蓝移的速率,这就是本文实验中见到的情 况.由于参与发光的电子和空穴在实空间是分离的, 因此复合发光的强度与电子、空穴波函数的交叠程 度有关.光激发强度增大时,三角势阱变陡,波函数 交叠增加,发光强度增大,下面选择激发光谱中将看 到这种情况.

为了能更多地了解 GaAsSb/GaAs 异质结排列的 信息 我们用不同能量的激光激发样品 即选择激发 光谱.结果发现,当激发光的能量低于 GaAs 带边和 高于 GaAs 带边时,两者的光荧光光谱发生了很大变 化.图 3 给出 GaAs<sub>0.84</sub> Sb<sub>0.16</sub>/GaAs 量子阱样品( 样品 A)在不同能量激光激发下的光荧光谱.从图 3 可以 看到以下几个特点 (1) 光激发光能量大于 GaAs 势 垒带隙(1.516 eV)时,即图中1.590eV光激发的情 况 其荧光光谱与图 1 所示光谱没有差别,但当激发 光能量小于 GaAs 带边时,从 1.590eV 变化到 1.471eV 光谱出现两个重要的变化:一是荧光强度 迅速下降,两者相差近10倍;二是在1.471eV激发 的光谱上 除了低能发光峰外(以下称之为 E<sub>1</sub>发光 峰),在其高能端又出现一个新的发光峰(E<sub>1</sub>),两者 相差近 30meV. 我们认为 E<sub>1</sub> 发光起源于同位于 GaAsSb 层中的电子、空穴复合发光,即空间直接跃 迁,其发光峰能量为 1.321eV,下面将给出具体讨 论.(2)随激发光能量增加,开始时 E<sub>1</sub>峰位置没有



图 3 样品 A 的选择激发荧光光谱 ,显示出 PL 光谱在不同能量 激发下的变化

明显的变动(图 3 中 1.321—1.348eV 激发),然后随 激发光能量增加明显蓝移.而  $E_{I}$  发光峰能量基本 不变.(3)当激发光能量靠近  $E_{I}$  时(1.321— 1.348eV),在低于激发光能量 16.5±0.5meV 的位置 出来一个新峰,它随激发光能量变化改变位置,但是 总比激发光能量低一个固定值.当激发光能量远离  $E_{I}$ 时这个峰消失.这个随激发光能量变化的新峰的 具体物理机理目前还不清楚.

当我们假定  $E_{\uparrow}$  是发生在 GaAsSb 层中的空间 直接跃迁( Ⅰ类 ) 而 E<sub>Ⅱ</sub>发光是间接跃迁( Ⅱ类 )时, 上述实验现象便可得到很好的解释.当激发光能量 小于 GaAs 带边时 此时仅仅 GaAsSb 层受到激发 激 发产生的空穴会被局域在量子阱中,而电子则有两 个弛豫通道: 一是弛豫到相邻的 GaAs 中, 参与 [] 类 发光 ;二是被 GaAsSb 层中局域中心俘获 ,这些局域 中心是由于 Sb 组分分布不均匀造成的 这在半导体 合金中十分常见,特别在晶格失配材料中,例如 In-GaN,这些被 GaAsSb 层中局域中心俘获的电子将参 与 | 类跃迁.从时间域上,上述两个弛豫过程均发生 在几个皮秒内 即两者的概率差不多,所以,我们认 为  $E_{\perp}$  发光是 GaAsSb 层中的局域激子发光,由于参 与垂直跃迁的电子、空穴波函数交叠大,跃迁概率 大 因此实验上观测到较强的发光.正因为 E<sub>1</sub> 跃迁 发生在 GaAsSb 导带附近的电子和空穴量子能级之 间 因此其发光能量不会因激发光波长的不同而移 动.而参与  $E_{\parallel}$ 跃迁的电子、空穴在空间上是分离

的,由于能带弯曲效应,其能级(特别是电子能级)位 置与界面附近的载流子浓度有很大关系.当浓度增 大时,能带弯曲加大,电子能级抬高,发光蓝移。当 激发光能量低于 GaAs 带隙时,仅仅 GaAsSb 层被激 发,产生的载流子有限,因此能带弯曲不明显,*E*<sub>II</sub>发 光能量位置基本不变.当激发光能量增加时,电子动 能增大,弛豫到 GaAs 层的电子数目增加,能带弯曲 加大,光谱发生蓝移(图 3 中 1.356—1.471eV 激 发). 当激发光能量高于 GaAs 带隙时,GaAs 和 GaAsSb 都受到激发,光生载流子增加,能带弯曲加 剧,相应发光也发生大的蓝移.同时,电子空穴波函 数交叠增加,因此发光强度也大大增强,这与实验结 果一致.

有了上述分析结果,就可以把  $E_{I}$ , $E_{I}$ 两个发 光峰之间的能量差近似看作导带异质结台阶  $\Delta E_{e}$  = 29.7meV.在作这个近似时,忽略了激子束缚能和能 带弯曲造成的电子能级变化.根据量子阱有效质量 模型,通过简单计算,可以得到价带异质结台阶  $\Delta E_{v}$ = 234.8meV 和应变下的带阶系数(strained band offset) $Q_{v}$  = 1.145.与文献报道的结果相比,这个结果还 是可信的,因此反过来也支持我们对发光峰来源的 判断.目前文献中报道的 GaAsSb/GaAs 异质结带阶 系数在 1.05—2.1 之间<sup>[8,9]</sup>.考虑到应力效应,可以 计算出应力对 GaAs<sub>0.84</sub>Sb<sub>0.16</sub>/GaAs 带边的修正:

$$\delta E_{e} = 2a_{e}(1 - C_{12}/C_{11}) \varepsilon = 97.0 \text{meV}$$
  

$$\delta E_{HH} = -2a_{v}(1 - C_{12}/C_{11}) \varepsilon$$
  

$$-b(1 + 2C_{12}/C_{11}) \varepsilon$$
  

$$= 26.5 \text{meV}.$$

上述所有参数都是通过对 GaAs 和 GaSb 的有关参数 进行平均计算得来的,所有参数都来自于文献 7]. 从上面得到的  $\Delta E_e$ 和  $\Delta E_v$ 中,引入应力,可以得到 无应力状态下的异质结带阶系数  $Q_v^0 = 0.76$ .这个值 比文献 7 报道的结果(0.84—0.86)稍小一些.

最后,用单光子计数技术测量了 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub>/ GaAs 的荧光衰退时间.图 4 给出 GaAs<sub>0.79</sub>Sb<sub>0.21</sub>/GaAs (样品 C)在 12 和 250K 下发光峰值位置附近的荧光 衰退曲线<sup>12,13]</sup>.实验中激发光能量远高于 GaAs 带 隙,发光以II 类发光为主.12K 下测量到的荧光衰退 寿命 τ 约为 15ns,而在 250K 下荧光衰退寿命 τ 则为 8ns 高温下荧光衰退寿命变短是由于非辐射复合参 与的结果.上述实验结果与 II 类排列的 GaSb/GaAs 量子点中寿命(20ns)很接近<sup>[14,15]</sup>.在 II 类异质结中,



图 4 12 和 250K 下样品 C 的载流子寿命谱

由于电子和空穴分别限制在 GaAs 导带和 GaAsSb 价 带中,所以电子空穴复合的时间要比 I 类排列的长 得多.值得一提的是,由于其在 k 空间还是 Γ—Γ 跃 迁,测量到的寿命相对于在 k 空间也是 II 类排列的 材料,例如 AlAs/GaAs 二类超晶格还是要短.

总之,本文通过不同实验手段,特别是选择激发 光荧光研究了 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub>/GaAs(x = 0.16—0.26)单 量子阱的光学性质,第一次同时观察到空间直接(I 类)和间接(II类)跃迁.两类发光跃迁表现出不同的 特性,II类发光的能量位置随激发功率的增大而蓝 移,也随激发光能量的增加而蓝移,实验结果可以很 好地用电荷分离造成的能带弯曲模型来解释,也是 空间间接跃迁的典型特性.本文还用时间分辨光谱 进一步论证了 GaAsSb/GaAs 能带排列的 II 类特性, 并通过简单计算得到了应变和非应变状态下的带阶 系数.

感谢胡承勇博士在实验上的帮助.

- [1] Yamada M, Anan T, Kurihara K, Nishi K, Tokutome K and Kamei A 2000 Electron. Lett. 36 637
- [2] Quochi F, Kilper D C, Cunningham J E, Dinu M and Shah J 2001 IEEE Photon. Technol. Lett. 13 921
- [3] Hatami F, Grundmann M, Ledentsov N N, Heinrichsdorff F, Heitz R, Böhrer J, Bimberg D, Ruvimov S S, Werner P, Ustinov V M, Kopev P S and Alferov Zh I 1998 Phys. Rev. B 57 4635
- [4] Bennett B R, Magno R and Shanabrook B V 1996 Appl. Phys. Lett. 68 505
- [5] Müller-Kirsch L, Heitz R, Schliwa R, Stier O, Bimberg D, Kirmse H and Neumann W 2001 Appl. Phys. Lett. 78 1418
- [6] Van der Walle C G 1989 Phys. Rev. B 39 1871
- [7] Liu G B , Chuang S L and Park S H 2000 J. Appl. Phys. 88 5554
- [8] Ji G , Agarwala S , Huang D , Chyi J and Morkoc H 1988 Phys. Rev. B 38 10571
- [9] Peter M , Winkler K , Maier M , Herres N , Wagner J , Fekete D and

Bachem K H 1995 Appl. Phys. Lett. 67 2639

- [10] Prins A D, Dunstan D J, Lambkin J D, O 'Reilly E P, Adams A R, Pritchard R, Truscott W S and Singer K E 1993 Phys. Rev. B 47 2191
- [11] Liu Q, Kerksen S, Lindner A, Scheffer F, Prost W and Tegude F J 1995 J. Appl. Phys. 77 1154
- [12] Zhang A Z , Zhang P , Duan S Q , Zhao X G and Liang J Q 2001 Chin. Phys. 10 537
- [13] Zhang H C, Wen J H, Guo B, Lai T S and Lin W Z 2000 Acta Phys. Sin. 49 1171(in Chinese ] 张海潮、文锦辉、郭 冰、赖天 树、林位株 2000 物理学报 49 1171]
- [14] Sun C K , Wang G , Bowers J E , Brar B and Blank H R 1996 Appl . Phys. Lett. 68 1543
- [15] Cebulla U, Forchel A, Tränkle G, Griffiths G, Subbanna S and Kroemer H 1987 Superlattices Microstruct. 3 429

## Study of optical properties in GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub>/GaAs single quantum wells \*

Luo Xiang-Dong<sup>1</sup><sup>†</sup> Bian Li-Feng<sup>1</sup> Xu Zhong-Ying<sup>1</sup>

Luo Hai-Lin<sup>2</sup>) Wang Yu-Qi<sup>2</sup>) Wang Jian-Nong<sup>2</sup>) Ge Wei-Kun<sup>2</sup>)

<sup>1</sup>(State Key Laboratory of Superlattices and Microstructures , Institute of Semiconductors , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100083 , China )

<sup>2</sup> (Department of Physics, Hong Kong University of Science and Technology, Hong Kong, China)

(Received 9 September 2002; revised manuscript received 10 December 2002)

## Abstract

GaAsSb/GaAs single quantum wells (SQWs) grown by molecular beam epitaxy are studied by selectively-excited photoluminescence (SEPL) measurement. For the first time, we have simultaneously observed the PL from both type I and type II transitions in GaAsSb/GaAs heterostructure in the SEPL. The two transitions exhibit different PL behaviours under different excitation energy. As expected, the peak energy of type I emission remains constant in the whole excitation energy range we used, while type II transition shows a significant blue shift with increasing excitation energy. The observed blue shift is well explained in terms of electron-hole charge separation model at the interface. Time-resolved (TR) PL exhibits more type II characteristic of GaAsSb/GaAs QW. Moreover, the results of the excitation-power-dependent PL and TRPL provide more direct information on the type-II nature of the band alignment in GaAsSb/GaAs quantum-well structures. By combining the experimental results with some simple calculations, we have obtained the strained and unstrained valence band offsets of  $Q_v = 1.145$  and  $Q_v^0 = 0.76$  in our samples, respectively.

**Keywords** : GaAsSb/GaAs , selectively-excited , type II transition **PACC** : 7320D , 7847

<sup>\*</sup> Project supported by the Special Foundation for State Major Basic Research Program of China( Grant No. G001CB3095) the National Natural Science Foundation of China( Grant No. 19974045), and the Nanotech Program of Chinese Academy of Sciences.

<sup>&</sup>lt;sup>†</sup> E-mail xdluo@red. semi.ac.cn