

# 分子束外延生长的 $(\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x/\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As})/\text{GaAs}$ 量子阱光致发光谱研究\*

徐晓华 牛智川† 倪海桥 徐应强 张 纬 贺正宏 韩 勤 吴荣汉 江德生

(中国科学院半导体研究所 超晶格与微结构国家重点实验室, 北京 100083)

(2004 年 5 月 14 日收到, 2004 年 11 月 18 日收到修改稿)

报道了  $(\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x/\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As})/\text{GaAs}$  量子阱结构的分子束外延生长与光致发光谱研究结果. 变温与变激发功率光致发光谱的研究表明了此结构为二型量子阱发光性质. 讨论了光谱双峰结构的跃迁机制. 通过优化生长条件, 获得了室温  $1.31\mu\text{m}$  发光.

关键词: 分子束外延, 量子阱, 二型发光

PACC: 8115G, 7320D, 7855E

## 1. 引 言

随着光纤通讯技术的发展, 基于 GaAsSb 材料体系的长波长器件越来越引起人们的重视. 以 GaAsSb/GaAs 异质结为有源区的边发射激光器, 发光二极管, 面发射激光器均有报道<sup>[1-4]</sup>. 但是, 由于其较小的导带带阶, 电子的限制较弱, 导致其温度特性不好. 1995 年, Peter 报道了  $(\text{GaAsSb}/\text{InGaAs})/\text{GaAs}$  量子阱结构, 推断其具有二型量子阱能带结构, 在拓展波长的同时能解决电子的限制问题<sup>[5]</sup>. 目前, 已有关于此结构的器件报道, 但是, 该结构的生长与光学性质还没有详细的研究报道.

本文报道了  $(\text{GaAsSb}/\text{InGaAs})/\text{GaAs}$  量子阱结构的分子束外延生长, 研究了此结构的光致发光谱性质. 从实验上证明了非直接跃迁的二型发光, 推断了其光谱双峰结构的跃迁机制. 通过优化生长条件, 获得了室温  $1.31\mu\text{m}$  发光.

## 2. 样品与实验

实验所用的  $(\text{GaAsSb}/\text{InGaAs})/\text{GaAs}$  样品由 Veeco Mod GEN-II 固源分子束外延系统在半绝缘 GaAs 衬底(001)晶面上生长得到. 样品基本结构如

图 1 所示: 先在  $580^\circ\text{C}$  下 GaAs 衬底上生长 300nm 的 GaAs 缓冲层, 缓变降温至  $520^\circ\text{C}$  生长 20nm 的 GaAs 势垒和 4nm 的 GaAsSb; 然后引入生长停顿, 衬底降温至  $450^\circ\text{C}$ , 再生长 4nm 的 InGaAs 与 20nm 的 GaAs 盖层.  $\text{As}_2$  和  $\text{Sb}_4$  分别由裂解炉和低温炉产生, 衬底温度由红外仪测得. 为了获得较准确的 Sb 组分控制, 实验在富 As 条件下生长, Ga 的生长速率固定为  $0.7\mu\text{m}/\text{h}$ , V-III 族等效束流比 (BEP V/III ratio) 为 27.

GaAs 20 nm
InGaAs 4 nm
GaAsSb 4 nm
GaAs 20 nm
GaAs Buffer 300 nm
SI GaAs(100)sub

图 1  $(\text{GaAsSb}/\text{InGaAs})/\text{GaAs}$  量子阱样品的基本结构

Sb 和 In 的组分由同样条件下生长的 GaAsSb/GaAs 和 InGaAs/GaAs 多量子阱样品的双晶 x 射线衍射测得. 光致发光谱用于测量光学跃迁性质, 激发光

\* 国家自然科学基金(批准号 90201026, 60137020), 863 计划资助和中国博士后科学基金支持的课题.

† E-mail: zeniu@red.semi.ac.cn

源为 632.8nm He-Ne 离子激光器,测量温度范围从 10K—300K,激发能量从 0.003mW—240mW.

### 3. 结果与讨论

图 2 为样品 A ( $\text{GaAsSb}_{0.27}/\text{In}_{0.35}\text{GaAs}$ )/GaAs 的室温光致发光谱(PL).图 2 显示,样品 A 室温下有两个发光峰,将位于长波长侧的峰称为主峰(main-peak),主峰的发光强度与相同条件下的  $\text{In}_{0.4}\text{GaAs}/\text{GaAs}$  量子阱的发光可比,半宽为 62meV,说明我们的样品质量比较好.位于短波侧,即高能端的峰称为第二峰(second-peak).两峰的波长差约为 120nm.

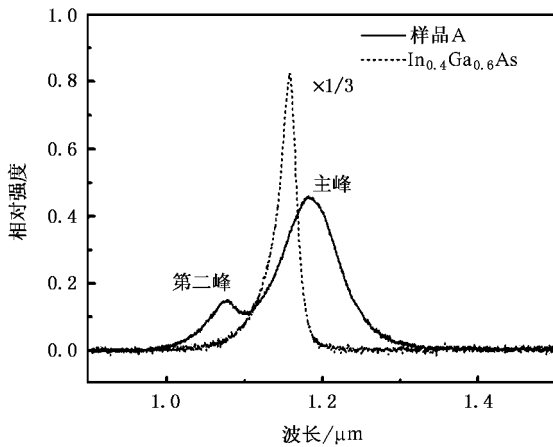


图 2 样品 A ( $\text{GaAsSb}_{0.27}/\text{In}_{0.35}\text{GaAs}$ )/GaAs 的室温 PL 谱,点线为参考样品  $\text{In}_{0.4}\text{GaAs}/\text{GaAs}$  量子阱

为了确定两峰的跃迁机制,我们测量了样品 A 的变温和变功率光致发光谱.图 3 为样品 A 的变温 PL 图,激发功率为 25mW.从图中可以看出:

(1) 主峰发光波长随温度增加不断向长波长移动,从 10K 到 300K,波长增加了 117nm.第二峰的峰值也随温度升高而红移.这种随温度升高的红移来自温度对吸收边能量位置的影响,首先是热膨胀,即温度导致晶格常数变化引起能带边缘的移动,其次是温度引起晶格振动状态的变化,导致电子-声子耦合,引起能带边缘的移动<sup>[6]</sup>.

(2) 样品 A 在激发功率为 25mW 时,直到 180K 才出现双峰结构,并且双峰的强度随温度升高而增强.

(3) 主峰的峰值移动显示微弱的“S”形结构,且“S”结构的扭曲出现在约 180K,即第二峰出现的温度值.这说明,此双峰结构的出现与载流子随温度变化,在不同能级间的填充有关.当温度较低时,载流

子“冻结”在最低能级上,当温度升高时,由于热效应,一部分载流子能量较高,有一定几率跃迁到更高的能级,从而出现双峰结构.

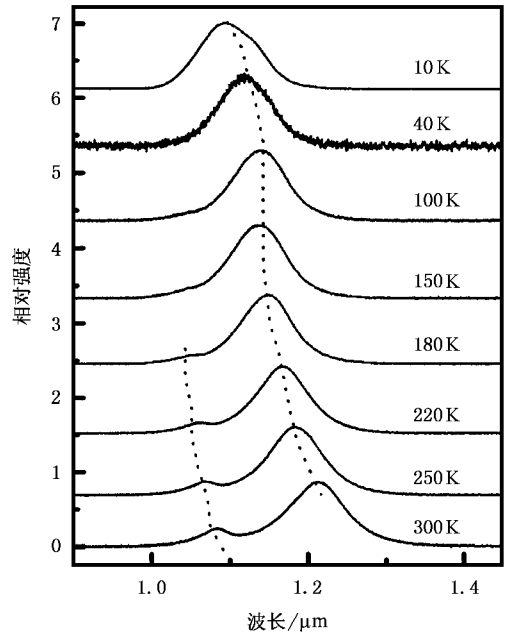


图 3 样品 A 的变温 PL 谱,激发功率为 25mW

为了进一步确定双峰的复合机制,我们测量了样品 A 的变功率 PL 谱.在变功率 PL 谱测量中,我们发现,随激发功率的增大,主峰的位置发生强烈的蓝移,从 0.024mW 到 100mW,主峰蓝移了 80meV,表现出明显的二型发光的特征,这种特性已在  $\text{GaAsSb}/\text{GaAs}$  和  $\text{GaInP}/\text{GaAs}$  结构中有过报道<sup>[7,8]</sup>.图 4 给出了 10K 下变功率 PL 谱结果.可以看到:

(1) 当激发功率大于 80mW 时,出现双峰结构.这说明双峰结构确实来自填充在不同能级的载流子的复合跃迁.

(2) 同变温谱相似,图 4 中主峰的变动也表现出明显的“S”形特征.当功率大于 80mW 时,主峰开始向低能侧移动.这种变化既来自大功率下晶格的热效应,也部分的来自少数载流子开始填充到双峰结构的高能级上.

图 5 显示了主峰与第二峰的峰值能量与激发功率的关系.主峰的数据在 10K 测得,激发功率从 0.003mW 变至 240mW;为了得到较多数据,考虑到低温下第二峰在小功率情况下不出现,其数据在 300K 下测得,激发功率从 1mW 变至 100mW.从图 5 中可以看出,主峰的强烈蓝移分为两个区域,当功率小于 1mW 时,以 7meV 每量级的速度增加;当功率大于 1mW 时,以 35meV 每量级的速度增加.而第二

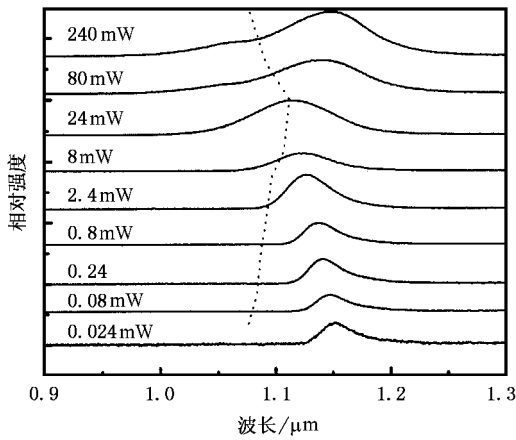


图 4 样品 A 的变功率 PL 谱, 测量温度为 10K

峰的峰值能量基本保持为常数,更详细的数据表明,当功率从 1mW 增加到 100mW 时,第二峰的峰值能量有 10meV 的微弱减少.图 6 以双对数坐标显示了主峰与第二峰的光致发光积分强度与激发功率的关系.根据  $I_p L = C \times P^\alpha$ ,在双对数坐标下直线拟合结果表明,对于主峰,  $\alpha = 1.20$ ;对于第二峰,  $\alpha = 1.01$ .当  $\alpha \geq 1$  时,发光机制为带间载流子复合 (band-to-band recombination)<sup>[9]</sup>.此结果对于讨论双峰的复合机制很重要,排除了其它有可能影响变功率测量结果的复合机制.

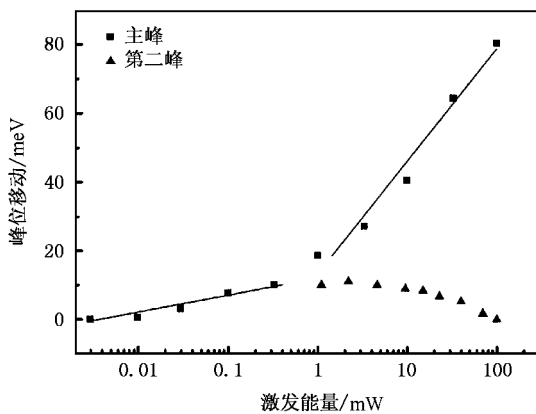


图 5 主峰与第二峰峰值能量随激发功率的变化曲线

根据以上结果,结合 (GaAsSb/InGaAs)/GaAs 的能带计算,我们认为:主峰来自局域在 InGaAs 势阱里的电子与局域在 GaAsSb 势阱里的空穴的复合,这是空间上分离的非直接跃迁,即二型发光.而第二峰来自在高温或大功率激发下,从 InGaAs 弛豫到 GaAs 的电子与 GaAsSb 中的空穴的复合发光,这也是一种二型发光,只是几率更小一些,且 GaAs 的导带底与

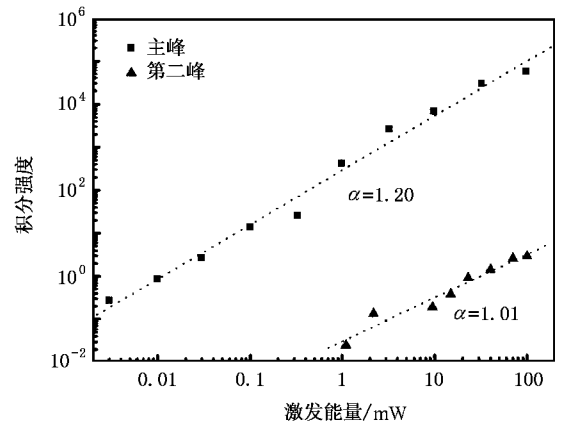


图 6 主峰与第二峰 PL 谱积分强度随激发功率的变化及拟和曲线

GaAsSb 导带底很接近,对电子限制作用微弱,我们称为准二型发光.图 7 显示了双峰结构的跃迁模型.

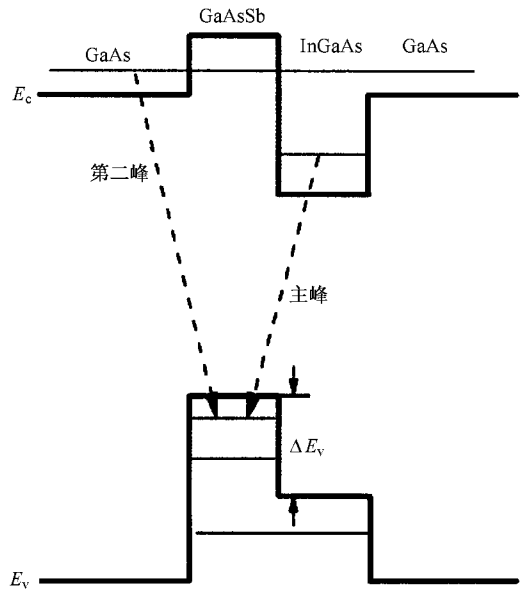


图 7 (GaAsSb/InGaAs)/GaAs 量子阱结构的能带示意图及双峰复合模型

根据图 7 的模型,我们可以很好的解释上述结果.因为 InGaAs 的导带底与 GaAsSb 的价带顶很近,局域在 InGaAs 中的电子与 GaAsSb 中的空穴有很强的库仑相互作用.这种能带的耦合作用使得复合成为可能.当激发功率增大时,光生载流子增加.由于界面上的内建电场,界面上能带弯曲,形成三角型势阱,电子和空穴都局域在势阱内.这种能带弯曲与载流子在狭窄势阱中的填充,导致子能级间的跃迁差增加,发光波长蓝移.当功率进一步增加,由于晶格的热膨胀效应以及载流子的部分能量以声子形式传递给晶格,使得发光峰值开始红移,如图 6 所示.同

时,在大功率激发下出现的第二个峰和在变温谱中的一样,来自于从  $\text{InGaAs}$  弛豫到  $\text{GaAs}$  的电子与  $\text{GaAsSb}$  中的空穴的复合发光。

当功率较大或温度较高时,会有部分高能电子以一定几率跃迁至更高的能级.理论计算表明,电子的基态能级位于  $\text{InGaAs}$  阱内,第一激发态则扩展于  $\text{GaAs}$ ,  $\text{GaAsSb}$  与  $\text{InGaAs}$ . 因为空穴的有效质量远大于电子的有效质量,并且空穴扩展于  $\text{InGaAs}$  的第三能级与  $\text{GaAsSb}$  中的重空穴第一能级差为约  $300\text{meV}$ ,远大于室温下热激发能.所以,我们认为第二峰为弛豫到  $\text{GaAs}$  中的电子与  $\text{GaAsSb}$  中的空穴复合产生.因为第二峰的载流子很少,所以变功率下的蓝移效应基本由热效应引起的红移抵消,导致功率增加时,第二峰基本不变,甚至表现出微弱的红移现象。

为了进一步验证这一跃迁机制,生长了三个比较样品 (a)  $\text{In}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}/\text{GaAs}$  (8nm/20nm) 单量子阱, (b)  $\text{GaAs}_{0.75}\text{Sb}_{0.25}/\text{GaAs}$  (8nm/20nm) 单量子阱; (c)  $(\text{GaAs}_{0.75}\text{Sb}_{0.25}/\text{In}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As})/\text{GaAs}$  (3nm/5nm/20nm) 单量子阱,并在相同条件下测量了光致发光谱.结果显示在图 8. 从图 8 可知  $(\text{GaAsSb}/\text{InGaAs})/\text{GaAs}$  结构的发光波长比相同条件下生长的  $\text{InGaAs}$  和  $\text{GaAsSb}$  长,这与图 7 所示的跃迁模型是相符的.同时  $(\text{GaAsSb}/\text{InGaAs})/\text{GaAs}$  的半宽为  $44\text{meV}$ ,小于  $\text{GaAsSb}/\text{GaAs}$  结构的  $55\text{meV}$ ,由图 7 可知,这是由于相对与  $\text{GaAsSb}/\text{GaAs}$  异质结较小的导带带阶,  $(\text{GaAsSb}/\text{InGaAs})/\text{GaAs}$  中电子限制在很深的势阱里,因而光谱的半宽较小。

最后,根据我们的跃迁模型,我们认为,  $\text{GaAsSb}$  与  $\text{InGaAs}$  的异质界面质量将对此量子阱结构的发光质量产生很大影响.虽然  $520^\circ\text{C}$  与  $450^\circ\text{C}$  对于分别获取最佳的  $\text{GaAsSb}$  层与  $\text{InGaAs}$  层是最佳选择,但是,界面上引入的生长停顿所带来的缺陷和不平整,将严重影响通过界面发生的二型跃迁.正是由于这种影响,减小了主峰的跃迁概率,使得载流子弛豫到第二能级或通过非发光复合中心复合的几率大大增加.因此,我们对样品 A 的生长条件做了优化,界面上不再引入生长停顿,  $\text{GaAsSb}$  与  $\text{InGaAs}$  均在  $500^\circ\text{C}$  下生长.在这种条件下,我们生长了样品 B:  $\text{GaAsSb}_{0.29}/\text{In}_{0.4}\text{GaAs}/\text{GaAs}$  三量子阱结构,其室温发光波长为  $1314\text{nm}$ ,光谱为单峰结构,半宽为  $60\text{meV}$ ,强度可以和  $\text{InGaAs}$  样品比较.图 9 显示了样品 B 室温 PL 谱结果.同样品 A 相比,在增大  $\text{In}$  和  $\text{Sb}$  组分

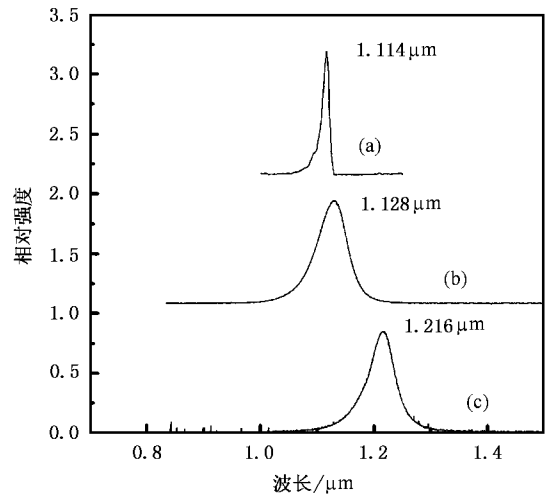


图 8  $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ ,  $\text{GaAsSb}/\text{GaAs}$  ( $\text{GaAsSb}/\text{InGaAs})/\text{GaAs}$  的 PL 谱对比

拓展波长的同时,发光强度无明显变化,半宽减小,第二峰显著减弱.这说明了我们的优化条件很大的改善了界面质量,改善了发光性质.同时,也证明  $(\text{GaAsSb}/\text{InGaAs})/\text{GaAs}$  量子阱结构在长波长器件应用方面的潜力。

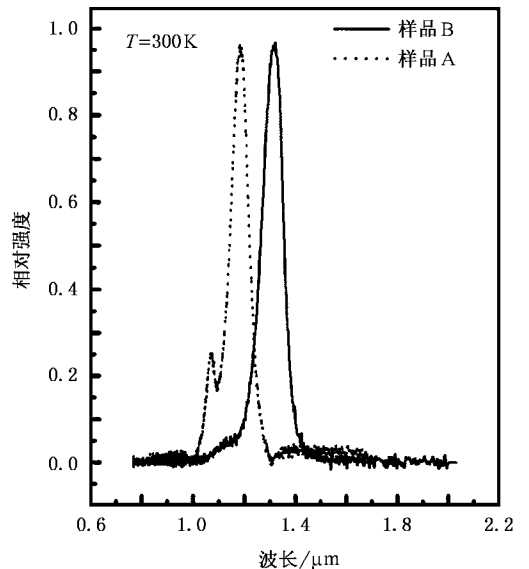


图 9  $\text{GaAsSb}_{0.29}/\text{In}_{0.4}\text{GaAs}/\text{GaAs}$  三量子阱结构的室温 PL 曲线

## 4. 结 论

本文研究了  $(\text{GaAsSb}/\text{InGaAs})/\text{GaAs}$  量子阱结构的分子束外延生长与光致发光谱性质.通过变温与变激发功率 PL 谱的讨论,结合理论计算结果,从实

验上证明了此结构的二型发光机制,并讨论了光谱双峰结构的成因.在此基础上,通过优化生长条件,得到了室温下  $1.31\mu\text{m}$  的发光,明显减弱了第二个

峰的强度,为进一步制备激光器件等 GaAs 基长波光电子器件奠定了材料基础.

- [ 1 ] M. Yamada *et al* 2000 *Electron. Lett.* **36** 637
- [ 2 ] Ustinov V M and Zhukov A E 2000 *Semicond. Sci. Technol.* **15** R41
- [ 3 ] Quochi F *et al* 2001 *IEEE Photonics Technol. Lett.* **13** 921
- [ 4 ] Blum O and Klem J F 2000 *IEEE Photonics Technol. Lett.* **12** 771
- [ 5 ] Peter M *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 2639
- [ 6 ] Shen X C 2002 *Optical Spectra and Property of Semiconductors* ( Beijing Science Press )( in Chinese ) p. 125 [ 沈学础 2002 半导体光谱和光学性质(北京:科学出版社),p125 ]
- [ 7 ] Liu Q *et al* 1995 *J. Appl. Phys.* **77** 1154
- [ 8 ] Luo X D, Hu C Y and Yu Z Y 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 3795
- [ 9 ] Yang Q K, Chen J X and Li A Z 1998 *J. Crystal. Growth* **194** 31

## Photoluminescence study of $(\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x/\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As})/\text{GaAs}$ bilayer quantum well grown by molecular beam epitaxy<sup>\*</sup>

Xu Xiao-Hua Niu Zhi-Chuan<sup>†</sup> Ni Hai-Qiao Xu Ying-Qiang Zhang Wei

He Zheng-Hong Han Qin Wu Rong-Han Jiang De-Sheng

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

( Received 14 May 2004; revised manuscript received 18 November 2004 )

### Abstract

Photoluminescence study of  $(\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x/\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As})/\text{GaAs}$  bilayer quantum wells (BQWs) grown by molecular beam epitaxy (MBE) were carried out. Temperature and excitation power dependent photoluminescence (PL) study indicated that the band alignment of the BQWs is type-II. The origin of the double-peak luminescence was discussed. Under optimized growth conditions, the PL emission wavelength from the BQWs has been extended up to  $1.31\mu\text{m}$  with a single peak at room temperature.

**Keywords:** molecular beam epitaxy, bilayer quantum well, type-II luminescence

**PACC:** 8115G, 7320D, 7855E

<sup>\*</sup> Project partly supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 90201026, 60137020), the National High Technology Research and Development Program and Post-Doctoral Science Foundation of China.

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