

压电调制反射光谱研究 GaAs/Al_{0.29}Ga_{0.71}As 单量子阱^{*}

王 尧[†] 陈平平 周旭昌 夏长生 王少伟 陈效双 陆 卫

(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)

(2004 年 9 月 30 日收到 2004 年 12 月 13 日收到修改稿)

报道了压电调制反射测量系统的建立,应用该系统获得了势阱宽度分别为 5nm 和 25nm 的两个 GaAs/Al_{0.29}Ga_{0.71}As 单量子阱的压电调制反射谱.从图谱中可以看出,在室温下能够较容易地分辨出和轻、重空穴相关联的子带跃迁.在阱宽 25nm 的样品中还观察到了自旋-轨道跃迁.利用有效质量理论近似计算,对量子阱样品的图谱结构进行了指认,发现实验值和计算值能够较好地符合.

关键词:压电调制反射光谱,单量子阱,分子束外延

PACC: 7320, 7360, 7865, 4280

1. 引 言

自 1965 年 Engeler 等人开创利用压电陶瓷进行基于应力调制的压电调制反射 (piezomodulated-reflectance, PzR) 光谱研究以来^[1], PzR 技术已广泛用于半导体材料、量子阱、异质结和超晶格电子能态间的跃迁研究,由于其对光谱测量的高分辨率和对布里渊区临界点类型和位置的精确指认,使得这项技术成为研究半导体和各种异质结的强而有效的工具^[2]. 1993 年, Yuri 等利用 PzR 研究了 NaCl, SrF₂, BaF₂ 的特征激子的行为^[3], 将调制技术扩展到一个半导体以外的其他材料的研究领域,加上 PzR 是一种选择性的调制^[2], 即能够提供反映各向异性的调制光谱^[4], 使我们利用 PzR 研究多种固体功能材料的光学性质成为可能.

PzR 对样品产生周期性调制的原理是利用压电陶瓷的逆压电效应,通过在压电陶瓷上施加交变电压,使陶瓷产生周期性的伸缩振荡,于是向粘贴在其表面的样品施加周期性的伸张和收缩应力,样品的能带 E_g 随应力作用发生偏移,并在光谱上的位置发生微小的变化.测量获得的光谱为介电函数的微分谱.与光调制反射相比,压电调制能够提供更多的子带跃迁及更尖锐的峰结构,而且在低温测量过程中不会存在因调制激光激发较强荧光对信号产生

的干扰,同时也不需要使用光调制实验中外加一个滤光片来过滤强激光束反射的杂散光,使得调制光谱的光谱测量范围得到很大地扩充^[5],而压电调制的非均匀调制特征也导致了更多精细结构的可测性.

Lee 对低温下 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 单量子阱异质结进行 PzR 研究时,不仅得到了光谱结构中 $m = n$ 的“允许”跃迁(其中 m 代表第 m 个价带子带, n 代表第 n 个价带子带),还测到了 $m - n = 2$ 的“禁止”跃迁,同时获得了 m SO 自旋-轨道分裂跃迁中的高达 $n = 7$ 的自旋轨道分裂的结构^[6],显示了 PzR 在量子阱子带跃迁研究中的独特性.本文在成功建立压电测量系统的基础上,测量了势阱宽度分别为 5nm 和 25nm 的两个 GaAs/Al_{0.29}Ga_{0.71}As 单量子阱的压电调制反射谱,并对这些样品的 PzR 谱结构进行了指认.

2. 电子结构的压电调制

对于调制反射,其反射率可以表示为

$$\frac{\Delta R}{R} = \alpha(\epsilon_1, \epsilon_2) \Delta\epsilon_1 + \beta(\epsilon_1, \epsilon_2) \Delta\epsilon_2,$$

其中, α, β 为所谓的塞拉芬系数.对于 3D 半导体,反射谱的线形很大程度上由介电函数的实部决定,而透射、荧光和激子谱很大程度上由介电函数的虚

^{*} 国家自然科学基金(批准号:10074068 和 60244002)资助的课题.

[†] E-mail: Cwang@mail. sip. ac. cn

部决定. 这一规律对于 2D 半导体大体上也是成立的.

在 PzR 实验中, 压电陶瓷向样品施加一个周期性的应力 X , 使样品的 E_g 被调制, 公式可以写成

$$\Delta E_g = (dE_g/dX)X.$$

样品在周期性应力作用下产生的应变 $\Delta l/l$ 大约在 10^{-5} 量级^[7,8]. 如果将样品的两端粘在陶瓷上, 则样品受到单轴应力; 若是将样品整个背面粘在陶瓷上, 则样品受到的是共面的应力.

应力 X 和应变 e 可以写成二阶张量形式, 它们可以通过一个四阶顺从张量 S 联系起来, 表达成

$$e_{ij} = S_{ijkl}X_{kl},$$

e 和 X 一般各自有 6 个独立的分量, 但在立方晶体中, S 减少到只有 3 个独立的非零分量. 在紧缩符号中, e 和 X 的 6 个独立分量可以将其看成是 6 维矢量, S 可以看成是一个二阶张量, 即

$$\begin{pmatrix} e_{xx} \\ e_{yy} \\ e_{zz} \\ 2e_{yz} \\ 2e_{zx} \\ 2e_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{12} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{11} & S_{12} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{12} & S_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X_{xx} \\ X_{yy} \\ X_{zz} \\ X_{yz} \\ X_{zx} \\ X_{xy} \end{pmatrix}.$$

电子能态 dE/dX 的调制完全可以从形变势的角度来描述. 对于闪锌矿型半导体材料, 由于价带的 p 态性质, 价带极值在 $k=0$ 处是六度简并的. 在自旋-轨道分裂作用下, 这些简并将发生分裂, 在 Γ_8 处形成四度简并, 在 Γ_7 处形成二度简并的自旋-分裂带. 在量子阱的 Γ_8 处, 沿 $[001]$ 方向和 $[111]$ 方向分裂成二度简并的且与重空穴对应的 $m_j = \pm 3/2$ 带, 沿量子化轴方向分裂成二度简并的与轻空穴对应的 $m_j = \pm 1/2$ 带. 于是, 三个分离的能级构成了价带向导带跃迁的初始状态, 其他状态的简并由于临界点偏离中心位置而在二维量子结构中消失了. 对于 Γ_8 价带极大值, 应力的哈密顿形式可以表示为^[9]

$$\begin{aligned} H_e = & -a_v(e_{xx} + e_{yy} + e_{zz}) \\ & -3b\left[\left(L_x^2 - \frac{1}{3}L_y^2\right)e_{xx} + \text{c.p.}\right] \\ & -\frac{6d}{\sqrt{3}}\left[(L_x L_y)e_{xy} + \text{c.p.}\right], \end{aligned}$$

其中 L 为角动量算符; a_v 为静流体形变势; b 和 d 分别为 Γ_8 价带极大值的四角形剪切形变势和三角形

剪切形变势; c. p. 是与 x, y 和 z 方向有关的循环对易.

在一个 $[001]$ 对称共面应力作用下, 应变张量元表示为

$$e_{xx} = e_{yy} = (S_{11} + S_{12})x,$$

$$e_{zz} = S_{12}x,$$

$$e_{xy} = e_{yz} = e_{zx} = 0,$$

其中 S_{11} 和 S_{12} 是弹性顺从系数. 则得到 Γ_6 导带极小值、轻空穴、重空穴态及自旋轨道空穴态的能量偏移可以表示为

$$\frac{dE_{\Gamma_6}}{dX} = a_v(S_{11} + 2S_{12}),$$

$$\frac{dE_{lh}}{dX} = 2a_v(S_{11} + 2S_{12}) - b(S_{11} - S_{12}),$$

$$\frac{dE_{lh}}{dX} = 2a_v(S_{11} + 2S_{12}) + b(S_{11} - S_{12}),$$

$$\frac{dE_{sh}}{dX} = a_v(S_{11} + 2S_{12}).$$

3. 实 验

实验使用量子阱样品由 RIBER32P 型 MBE 系统生长, 生长过程中外延速度和 Al 的含量由 RHEED 振荡监控. 为了使单量子阱样品在压电陶瓷振荡时获得足够大的形变, 预先将样品从背面在氧化铝砂纸上减薄至 $180\mu\text{m}$ 左右, 同时为避免入射光在样品的底面产生的二次反射干扰信号的测量, 样品被减薄的一面尽量保持粗糙. 压电陶瓷由钛锆酸铅多晶 (PZT-4 型) 制成, 使用瞬干胶将量子阱样品整个背面粘在压电陶瓷的一个电极面上, 即采用共面应力模式, 见图 1. 压电陶瓷按 d_{33} 方式被极化 (极化方向沿陶瓷的厚度方向); 交流高压电源向压电陶瓷两个电极面上施加电场有效值的大小为 300V/mm , 压电陶瓷就会在与电极面平行的方向按此频率产生周期性的伸缩形变, 因此而导致样品产生形变的幅度 $\Delta l/l$ 约为 10^{-5} 左右.

测量使用探测光源为溴钨灯, 单色仪使用英国 ORIEL 公司的 Cornestone130 1/8m 型, 光栅行走波长范围为 $200\text{—}1600\text{nm}$; 硅光二极管探测器用来测量调制反射微分谱, 探测得到的信号先被锁相放大器放大后经 A/D 转换由计算机记录. 实验中的波长范围取 $600\text{—}1000\text{nm}$, 扫描步长为 1nm . 探测光源靠近法线入射, 锁相放大器使用的参考频率由驱动压电陶瓷的交变电源提供, 见图 2 所示. 测量过程中交

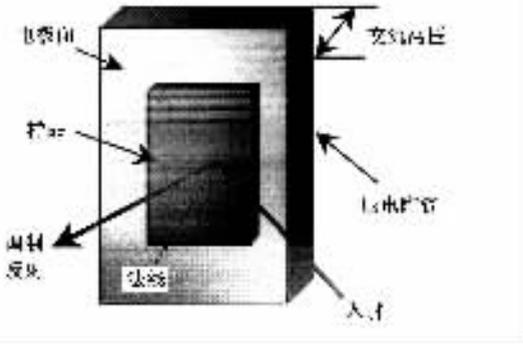


图 1 压电调制反射测量时样品粘贴表面的示意图

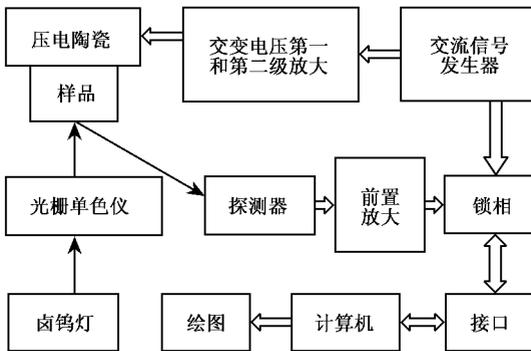


图 2 压电调制反射光谱测量系统示意图

流频率(也即参考频率)设定为 280Hz.

4. 实验结果和分析

为比较准确地定出跃迁峰的位置,利用 Lorentz 线性对实验 PzR 谱进行了拟合,所使用的公式为

$$\frac{\Delta R}{R} = \sum_j \frac{S_j \exp(i\phi_j)}{(E - E_j - i\gamma_j)^{n_j}} + a + bE,$$

式中 R 为反射率, E 为能量, E_j 为跃迁能量, S_j 为强度因子, ϕ_j 表示相位, γ_j 为弛豫因子, n_j 是微分的阶. 在拟合量子阱中的束缚态(子带)跃迁结构时,一般取 $n_j = 1$; 而对应与体材料本身的跃迁结构时,取 $n_j = 3$.

表 1 PzR 拟合实验得到的跃迁能量数值与有效质量近似理论计算值的比较

样品	数值类别	E_g/eV (GaAs)	11H/eV	11L/eV	13H/eV	22H/eV	E_g/eV (AlGaAs)
5nm	理论值	1.423	1.534	1.576	—	—	—
样品	实验值	1.417	1.541	1.575	—	—	—
25nm	理论值	1.423	1.449	1.457	1.475	1.498	1.794
样品	实验值	1.426	1.451	1.460	1.478	1.512	1.829

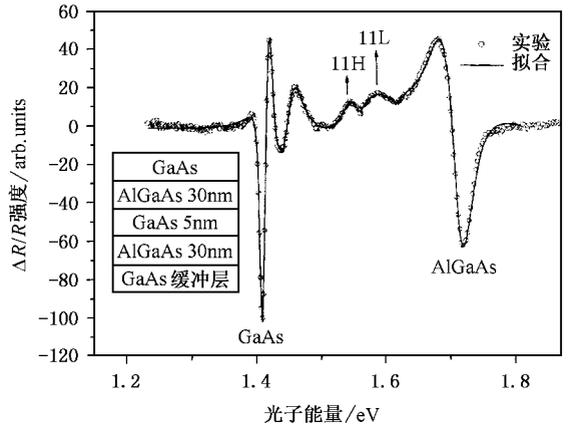


图 3 阱宽 5nmGaAs/Al_{0.29}Ga_{0.71}As 量子阱的 PzR 谱(左下角为单量子阱结构生长示意图)

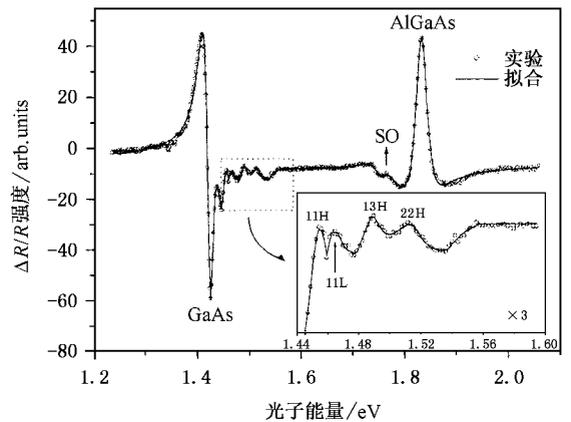


图 4 阱宽 25nmGaAs/Al_{0.29}Ga_{0.71}As 量子阱的 PzR 谱(右下角为虚线框部分纵坐标放大 3 倍后的示意图)

图 3 是阱宽为 5nmGaAs/Al_{0.29}Ga_{0.71}As 量子阱的 PzR 光谱实验和拟合结果,其中图的右下角为量子阱的生长结构. 为对图谱中的跃迁结构进行指认,我们利用有效质量近似理论对量子阱子带间的跃迁进行了计算,计算结果和拟合实验值结果的比较见表 1. 结合表 1 的计算结果可以看到:图中位于 1.417eV 的结构源自于 GaAs 的本征带隙跃迁峰;而

位于 1.746eV 的跃迁结构来自 $\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.71}\text{As}$ 势垒层的跃迁峰. 另外, 对位于 1.541eV 处和 1.575eV 处的两个电子结构进行指认也显得比较容易了, 它们应该是 GaAs 势阱中价带重空穴到导带子带的跃迁 11H 和轻空穴向到导带子带的跃迁 11L.

图 4 为阱宽为 25nm 量子阱样品的 PzR 谱, 其中样品的势垒宽度为 80nm, 生长结构与图 3 中右下脚的结构相同. 位于 1.426eV 处的结构是 GaAs 的本征带隙跃迁峰, 位于 1.829eV 处的电子结构对应于 $\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.71}\text{As}$ 势垒层的跃迁峰. 值得注意的是基于有效质量近似计算结果的指认, 不仅可以在室温条件下观察到分别位于 1.451eV, 1.460eV 和 1.512eV 的 11H, 11L 和 22H 的 $m = n$ 的子带跃迁峰, 也观察到了位于 1.478eV 处 $m - n = 2$ 的具有不相同量子数 n 能态间的跃迁 13H. 另外, 根据自旋-轨道分裂能量的经验公式^[9] $E_{so} = E_0 + \Delta_0 = 1.760\text{eV}$ (其中 E_0 为室温下 GaAs 本征带隙跃迁能量 1.426eV, $\Delta_0 = 0.34$) 我们认为位于 1.767eV 处的 SO 跃迁结构是来自 GaAs 本底 Γ_7 自旋-轨道分裂价带到 Γ_6 导带的跃迁. 由此可见, 室温下的基于应力调制的压电调制反射光谱依然具有极高的灵敏度.

如图所示, 25nm 样品的结构明显比 5nm 量子阱获得的跃迁结构要多, 这是由于在 5nm 阱宽的量子阱中, 电子的第一激发态已进入连续态, 所以可有较大跃迁概率的电子能态只有电子基态, 而 25nm 阱宽的量子阱电子束缚态就多于 2 个, 为此可以观测到更多的跃迁结构, 这与 Lee 等人的结果一致^[6]. 另外可以看出, 随着势阱宽度的增大, 子带间的跃迁峰发生明显的红移, 表明势阱对电子态的束缚随宽度增大而减弱.

用 PzR 测量得到的跃迁能量与有效质量近似理论计算结构相比较后发现两者能够符合得较好. 这一结果表明有效质量近似理论依然能够适用于室温下压电调制光谱的子带间能级跃迁计算, 只是 22H 跃迁计算值偏离实验值稍多一些, 这可能是由于测量中在这一结构对应的波长附近激子的束缚能 ($\sim 10\text{meV}$), 原子层的涨落 ($\sim 5\text{meV}$) 等因素共同作用的结果^[10].

25nm 样品的 $\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.71}\text{As}$ 势垒层对应于带隙的跃迁峰实验值 1.829eV 比计算值 1.794eV 要大, 这可能是由于生长过程中铝组分偏高的缘故, 由荧光 (PL) 谱测得带隙实验值为 1.823eV, 与 PzR 测量结果基本一致, 表明 25nm 阱宽的量子阱样品中 Al 的组分值 x 已达到了 0.32.

5. 结 论

利用基于应力调制的压电调制反射光谱研究了分子束外延生长的 GaAs/ $\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.71}\text{As}$ 单量子阱样品, 获得了室温下样品的压电调制反射光谱. 在 5nm 单量子阱样品中清晰可见来自价带轻、重空穴到导带的跃迁峰结构; 在 25nm 的单量子阱样品中观察到了具有不同量子数 n 能态之间的 13H 跃迁峰以及来自 GaAs 本底的自旋-轨道跃迁结构, 表明室温下压电调制光谱仍有极高的灵敏度. 利用有效质量近似计算得到的理论值和实验值进行了比较, 发现两者基本上能够较好地符合. 随着阱宽的增大, 对应的跃迁峰结构发生了明显的红移, 这与载流子受束缚的程度有关, 跃迁峰的结构出现也随阱宽增大而增多.

- [1] Engeler W E *et al* 1965 *Phys. Rev. Lett.* **14** 1069
- [2] Mathieu H *et al* 1990 *Phys. Rev.* B **43** 2218
- [3] Yuri M *et al* 1993 *J. Phys. Soc. Jpn.* **62** 818
- [4] Gavini A *et al* 1970 *Phys. Rev.* B **1** 672
- [5] Lee Y R *et al* 1987 *Appl. Phys. Lett.* **50** 600
- [6] Lee Y R *et al* 1989 *Phys. Rev.* B **41** 8380

- [7] Lin D Y *et al* 1998 *Solid. State. Commun.* **107** 533
- [8] Parks C *et al* 1992 *Phys. Rev.* B **45** 14215
- [9] Mathieu H *et al* 1987 *Phys. Rev.* B **36** 6518
- [10] Miao Z L *et al* 2001 *Acta. Phys. Sin.* **50** 111 (in Chinese) 缪中林等 2001 物理学报 **50** 111]

Piezomodulated-reflectivity study of GaAs/Al_{0.29}Ga_{0.71}As single quantum well^{*}

Wang Chong Chen Ping-Ping Zhou Xu-Chang Xia Chang-Sheng Wang Shao-Wei Chen Xiao-Shuang Lu Wei

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

(Received 30 September 2004 ; revised manuscript received 13 December 2004)

Abstract

We report here that we have built a set of piezomodulated-reflectivity measurement system , and obtained piezomodulated-reflectivity spectra of two GaAs/Al_{0.29}Ga_{0.71}As single quantum well samples in which the well widths are 5 and 25nm respectively. From these spectra , the transitions between electron and heavy and light hole subbands can be easily identified. Furthermore , we have observed the optical transition related to spin-orbit split-off of GaAs buffer. Effective mass theory is applied to calculate the transition energy between electron and hole subbands. Then the spectral structures are assigned based on the calculated results. It is found that these calculated results agree with experimental ones very well.

Keywords : piezomodulated-reflectivity spectra , single quantum well , molecular beam epitaxy

PACC : 7320 , 7360 , 7865 , 4280

^{*} Project supported by the Natural National Science Foundation of China (Grant Nos. 10074068 and 60244002)