

ZnCdO/ZnO 单量子阱结构及其荧光发射特性

易有根 王瑜英 胡奇峰 张彦彬 彭勇宜 雷红文 彭丽萍 王雪敏 吴卫东

Structural and photoluminescence characteristics of ZnCdO/ZnO single quantum well

Yi You-Gen Wang Yu-Ying Hu Qi-Feng Zhang Yan-Bin Peng Yong-Yi Lei Hong-Wen Peng Li-Ping Wang Xue-Min Wu Wei-Dong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 057802 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.057802

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.057802>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I5>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

LaTiO₃(110) 薄膜分子束外延生长的精确控制和表面截止层的研究

Precise control of LaTiO₃(110) film growth by molecular beam epitaxy and surface termination of the polar film

物理学报.2015, 64(7): 078103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.078103>

分子束外延制备的垂直易磁化 MnAl 薄膜结构和磁性

Structural characterization and magnetic properties of perpendicularly magnetized MnAl films grown by molecular-beam epitaxy

物理学报.2013, 62(17): 178103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.178103>

氧空位对 Eu²⁺ Dy³⁺ 掺杂的 Ca₅MgSi₃O₁₂ 发光及余辉性能的影响

Effect of oxygen vacancies on the fluorescence and phosphorescence properties of Ca₅MgSi₃O₁₂: Eu²⁺ Dy³⁺

物理学报.2013, 62(15): 153201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.153201>

载流子导引的折射率变化偏振相关性研究

Polarization dependence of carrier-induced refractive index change

物理学报.2012, 61(20): 207803 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.207803>

Y₃Al₅O₁₂~Ce³⁺ 的余辉和热释光特性

The afterglow and thermoluminescence properties of Y₃Al₅O₁₂~ Ce³⁺

物理学报.2011, 60(1): 013201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.013201>

ZnCdO/ZnO 单量子阱结构及其荧光发射特性*

易有根¹⁾ 王瑜英¹⁾²⁾ 胡奇峰¹⁾ 张彦彬¹⁾ 彭勇宜^{1)†} 雷红文²⁾
彭丽萍²⁾ 王雪敏²⁾ 吴卫东²⁾

1)(中南大学物理与电子学院, 超微结构与超快过程湖南省重点实验室, 长沙 410083)

2)(中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 等离子体物理重点实验室, 绵阳 621900)

(2015年10月8日收到; 2015年12月23日收到修改稿)

采用激光分子束外延方法在 Al₂O₃(0001) 单晶衬底上进行了 Zn_{1-x}Cd_xO/ZnO 单量子阱结构的生长, 通过控制基底温度、氧气分压等, 获得了阱宽约为 1.0, 1.5 和 4.0 nm 的单量子阱结构, 研究了量子阱组分、表面形貌、荧光发射特性. 结果表明, 通过脉冲激光烧蚀陶瓷靶的方法获得的 Zn_{1-x}Cd_xO 中 Cd 含量 x 约为 2%, 外延膜表面平整均匀, 界面质量良好, 在 325 nm He-Cd 激光激发下, 获得了非常强的光致荧光发射, 1.0 nm 量子阱结构荧光发射峰半高宽达到 60 meV, 通过量子阱宽度的调控, 量子阱的发射峰从 3.219 eV 红移到 3.158 eV, 且随着阱宽的增加, 量子限制效应变弱 (阱宽 4.0 nm 样品), 通过生长温度、气压条件的控制, 量子阱的缺陷密度可控制在较低水平.

关键词: ZnCdO 量子阱, 荧光光谱, 激光分子束外延, 量子限制效应

PACS: 78.67.De, 32.50.+d, 81.15.Hi, 68.65.Fg

DOI: 10.7498/aps.65.057802

1 引言

ZnO 作为一种直接带隙半导体材料, 其禁带宽度约为 3.37 eV, 激子束缚能达到 60 meV, 在高效发光二极管、激光器件、太赫兹器件等领域具有重要应用价值, 是国内外研究的热点. 在 ZnO 基光电器件的设计中, 需要开展 ZnO 材料的能带工程, 即在 ZnO 中掺入窄带隙的 CdO(2.3 eV, 直接带隙) 等氧化物半导体材料, 以降低材料的带隙, 通过量子阱结构的制备, 能够实现蓝光到可见光区的激光发射^[1,2]. 目前, 进行 ZnCdO 量子阱结构的制备研究主要是通过分子束外延(MBE)、有机金属化学气相沉积(MOCVD)、脉冲激光沉积(PLD)等方法: Sadofev 等^[3] 采用 MBE 方法进行了单相 ZnCdO 异质结的生长, Cd 掺杂浓度达到 32%, 从而将 ZnCdO 的带隙扩展至黄光区; Chen 等^[4] 采用射

频等离子增强分子束外延(rf-PE-MBE)方法制备了 Zn_{0.95}Cd_{0.05}O/ZnO(0001) 异质结, 研究了其带隙结构和带阶; Lange 等^[5] 采用 PLD 方法制备了 ZnO/ZnCdO/ZnO 双异质结, 并研究了其热稳定性; Jiang 等^[6] 采用 PLD 方法制备了 ZnCdO/ZnO 多量子阱(MQW)结构, 并研究了其结构和光学性质. 然而, 由于 CdO 与 ZnO 饱和蒸汽压不同, 两者晶格结构也不相同, 难以实现 CdO 的高浓度掺杂以及 ZnCdO 薄膜的外延生长^[7]. 在 PLD 基础上发展起来的激光分子束外延技术(LMBE), 在氧化物外延生长研究方面具有独特的优势, 采用适合的基底和优化的生长条件, 能够实现 ZnCdO 薄膜的高质量外延生长, 且 Cd 掺杂量最高能到达 29.7%^[8], 在 ZnCdO 材料的研究中受到越来越广泛的关注. ZnCdO 单量子阱(SQW)具有优异的发光特性, 具有很多不同于体材料的特征, 但其外延生长、界面状态、荧光发射特性还有待进一步研究, 特别是通

* 中国工程物理研究院激光聚变研究中心等离子体物理重点实验室基金(批准号: 9140C680501110C6803)和中南大学中央高校基本科研业务费专项基金(批准号: ZY2015681)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yougenyi@csu.edu.cn

过缺陷密度、界面质量、量子阱宽度等的调制,使得在较低Cd元素掺杂浓度下,实现蓝光到可见光区的荧光发射调制,对于材料的实际应用具有重要意义.

本文采用LMBE方法,通过基底温度、氧气分压等的控制进行了ZnCdO和ZnO薄膜的外延生长研究,在此基础上设计和制备了量子阱宽度1.0, 1.5和4.0 nm的ZnCdO/ZnO SQW结构,研究了ZnCdO薄膜的组分、结构特性、量子阱荧光发射特性以及量子阱宽度对量子限制效应的影响等.

2 实验方法

采用LMBE方法在 c -Al₂O₃单晶衬底上进行ZnCdO外延膜的生长,实验中使用了Cd含量为30%(mol)的ZnCdO陶瓷靶,采用KrF准分子激光器(248 nm, 20 Hz, 25 ns)作为烧蚀激光,激光的功率密度为2—3 J/cm². 实验在 1.0×10^{-7} Pa的超高真空环境下进行,衬底与基片之间的距离为5 cm, Al₂O₃单晶衬底在650 °C下退火90 min以获得最佳界面状态,然后衬底温度降至500 °C的优化生长速度,在0.5 Pa的氧气分压下进行ZnO缓冲层、ZnO阻挡层、ZnCdO量子阱层和ZnO帽层的外延生长,标定的ZnO和ZnCdO的生长速率分别为0.1和0.15 nm/s. 采用反射高能电子束衍射(RHEED, 加速电压25 kV, 入射角1°—3°)对界面状态和外延生长状况进行监测.

采用原子力显微镜(AFM)对ZnCdO外延膜的表面形貌进行表征,采用X射线衍射仪(XRD)对外延膜的结晶质量、物相结构等进行研究,材料中Cd的含量采用SEM-EDS能谱分析得到. 测量了4 K低温、325 nm He-Cd激光器激发下1.0, 1.5和4.0 nm的单量子阱结构的荧光发射特性,获得了量子阱宽度对量子限制效应的影响.

3 结果和讨论

3.1 ZnCdO外延膜

在Al₂O₃(0001)衬底上进行ZnO和ZnCdO薄膜的外延生长,在650 °C下退火90 min使Al₂O₃(0001)晶面达到最优的界面状态,其原位RHEED图像如图1(a)所示,经过退火处理,衬底RHEED图出现明亮均匀的条纹,500 °C下进行薄膜生长,

HEED衍射条纹仍为尖锐的明亮条纹,表明薄膜是以Stranski-Krastanov生长模式^[9]生长,但条纹间距变宽,这是由于Al₂O₃的晶格常数与ZnO不同,在外延生长时,ZnO的晶面簇发生了30°的旋转^[8],以实现晶格常数的匹配,如图1(b)所示.

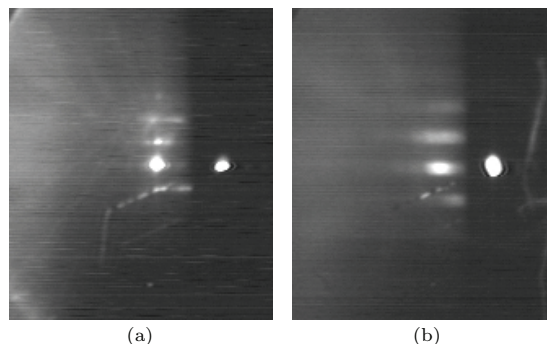


图1 ZnCdO薄膜生长RHEED原位在线监测图片(a) 650 °C下退火90 min衬底;(b) 500 °C下ZnCdO薄膜生长

Fig. 1. *In-situ* on-line monitoring of ZnCdO thin films grown by RHEED: (a) 90 min substrate at 650 °C; (b) ZnCdO film growth at 500 °C.

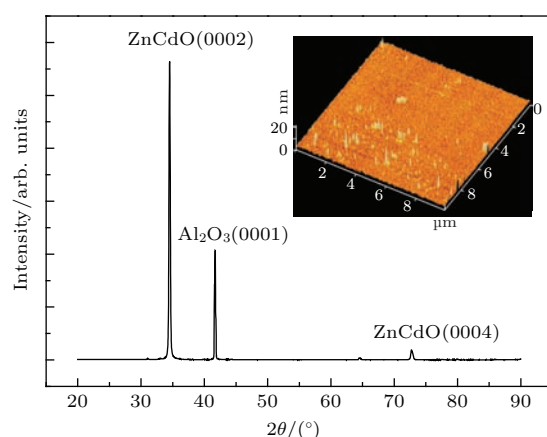


图2 (网刊彩色) ZnCdO薄膜XRD衍射图和AFM表面形貌

Fig. 2. (color online) XRD thin film ZnCdO diffraction and AFM surface morphology.

ZnCdO薄膜的XRD衍射图和表面原子力显微(AFM)图片如图2所示. 由于ZnO为六角结构,而CdO为四方晶系,在CdO的掺杂过程中很容易导致薄膜结晶质量变差,甚至产生CdO的析相^[7]. 在ZnCdO薄膜的XRD衍射图中,在34.5°和72.7°处出现了ZnCdO(0002)和(0004)的特征峰,由于Cd的掺杂量较少,ZnCdO的峰位与ZnO的基本重合,ZnCdO(0002)的半高全宽(FWHM)仅有约0.2°,表明ZnCdO薄膜的结晶质量良好. XRD衍射峰中未出现岩盐矿结构CdO(rs-CdO)的特

征峰位(rs-CdO(002): 33.3°, rs-CdO(111): 38.3°), 表明薄膜中没有CdO的析相. AFM图片给出了20 μm × 20 μm范围内ZnCdO薄膜表面形貌, 可见薄膜表面非常平整光滑, 其方均根粗糙度(RMS)仅为0.6 nm. 上述结果表明, 通过生长温度、气压条件等的控制, 可以实现具有良好界面质量和结晶质量的ZnCdO外延膜生长.

3.2 ZnCdO SQW 荧光发射特性

阱宽1.0 nm的ZnCdO SQW结构的光致荧光光谱如图3(a)所示, 在4 K低温下, 在3.219 eV处出现了非常强的ZnCdO SQW荧光发射峰, 3.360 eV处出现的发射峰为ZnO阻挡层的发射峰, 2.2 eV附近出现的宽带荧光发射为材料中氧缺位或Zn的填隙原子激发所致. ZnCdO SQW的荧光发射远强于ZnO阻挡层和深能级缺陷的荧光发射, 且量子阱发射峰半高全宽仅有60 meV, 表明ZnCdO/ZnO界面质量良好, ZnO阻挡层的光生载流子可以毫无阻碍地进入量子阱, 从而产生非常强的量子限制效应. 同时也表明, 采用LMBE方法可以实现良好的ZnCdO/ZnO界面生长, 这一结果也印证了上述AFM表面分析. 图3(b)所示为ZnCdO SQW结构的高分辨率荧光光谱, 3.007, 3.076和3.140 eV处的光致发光对应一阶、二阶和三阶纵光学声子(1LO, 2LO和3LO)发射, 其间距为64—69 meV.

不同阱宽度的ZnCdO SQW结构荧光光谱如图4所示, (I), (II), (III)样品量子阱宽度分别为1.0, 1.5和4.0 nm, 随着量子阱宽度的变大, 其荧光发射峰从3.219 eV红移到3.158 eV, 荧光发射峰的半高宽度则从60 meV展宽到204 meV, 根据一维方势阱模型估算量子限制效应存在的最低能量要求, 其计算结果为 $\Delta E \approx 110$ meV, 表明, 对于阱宽4 nm的量子阱结构, 量子限制效应已经非常弱. 另外, 图中3.360和3.374 eV处出现了受缚中性施主杂质激发(D^0X)和A类自由激子发射(FX_A)^[10], 3.302 eV处出现的是 FX_A-1LO , 与 FX_A 发射峰的能量间距约为72 meV, 与LO声子能量基本相同.

对于Cd含量为 x 的 $Zn_{1-x}Cd_xO$ 薄膜, 其光致荧光发射峰可用下面的经验公式进行估算^[10]:

$$E_{PL} = 3.37 - 12.4x + 92.28x^2 \text{ (eV)}. \quad (1)$$

对于Cd含量为2%的 $Zn_{1-x}Cd_xO$ 薄膜, E_{PL} 约为3.159 eV, 不同于ZnCdO SQW的荧光发射峰位, 这是由于量子限制Stark效应所致. 量子限制效应的产生, 可以使量子阱的荧光发射在体材料荧光发射峰附近发生调制, 对于本文制备的几种不同宽度的量子阱, 其调制宽度可达到60 meV.

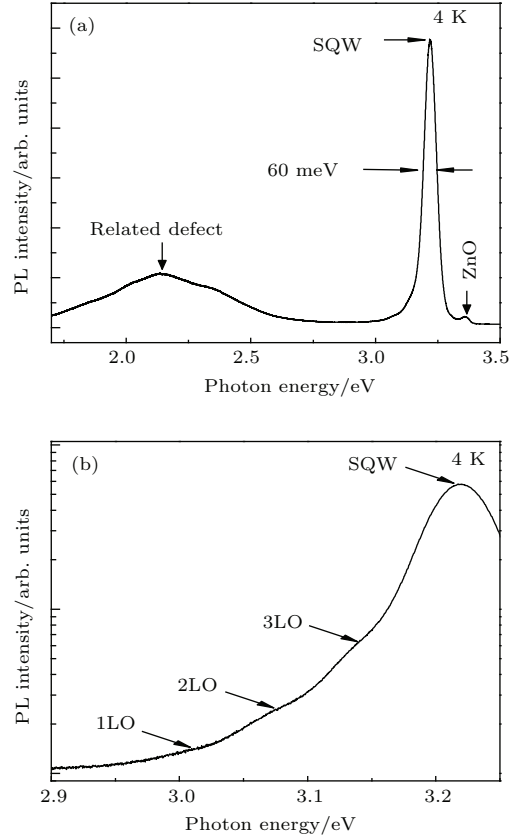


图3 4 K温度下阱宽度为1 nm的ZnCdO单量子阱 (a) 荧光光谱; (b) 纵光学声子谱
Fig. 3. PL spectrum of ZnCdO SQW with well-width of 1 nm at 4 K: (a) PL spectrum; (b) LO phonon.

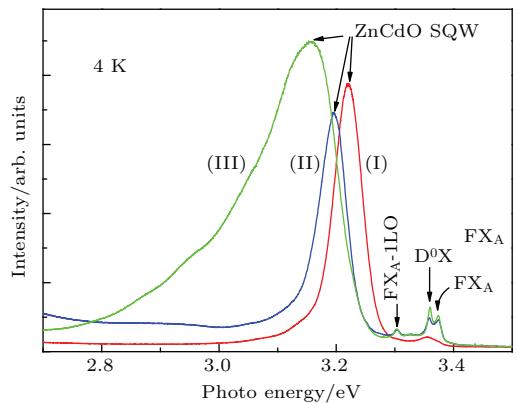


图4 (网刊彩色) 4 K温度下不同阱宽度的ZnCdO单量子阱荧光光谱 (I) 1 nm; (II) 1.5 nm; (III) 4 nm
Fig. 4. (color online) PL spectrum of ZnCdO SQW with different well-width at 4 K: (I) 1 nm; (II) 1.5 nm; (III) 4 nm.

4 结 论

本文采用LMBE方法,在 $c\text{-Al}_2\text{O}_3$ 单晶衬底上进行了 $\text{Zn}_{1-x}\text{Cd}_x\text{O}/\text{ZnO}$ 单量子阱结构的外延生长,通过控制基底温度、氧气分压等,获得了阱宽约为1.0, 1.5和4.0 nm的单量子阱结构,采用EDS, AFM, XRD和荧光发射谱仪等对量子阱组分、表面形貌、荧光发射特性等进行了研究,结果表明,采用LMBE方法,通过控制基底温度能够获得表面平整均匀、界面良好的 ZnCdO 外延膜, $\text{Zn}_{1-x}\text{Cd}_x\text{O}$ 中Cd含量 x 约为2%,在4 K低温下,通过325 nm He-Cd激光激发产生光致荧光发射,观察到了非常强的 ZnCdO/ZnO 量子阱荧光发射,荧光发射峰半高全宽达到60 meV,随着量子阱宽度的增大,量子阱的发射峰从3.219 eV红移到3.158 eV,且随着阱宽的增加,量子限制效应变弱,4.0 nm的单量子阱结构量子限制效应已经很弱.上述结果也表明,除了通过Cd掺杂量进行荧光发射调制外,还可以

通过适当控制量子阱的宽度,在一定范围内实现 ZnCdO 发光特性的调制.

参考文献

- [1] Yamamoto K, Ohashi T, Tawara T 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 171913
- [2] Yamamoto K, Tsuboi T, Ohashi T 2010 *J. Cryst. Growth* **312** 1703
- [3] Sadofev S, Blumstengel S, Cui J 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 201907
- [4] Chen J J, Ren F, Li Y J 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 192106
- [5] Lange M, Dietrich C P, Benndorf G 2011 *J. Cryst. Growth* **328** 13
- [6] Jiang J, Zhu L P, He H P 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 083513
- [7] Venkatachalapathy V, Galeckas A, Trunk M 2011 *Phys. Rev. B* **83** 125315
- [8] Lei H W, Yan D W, Zhang H 2014 *Chin. Phys. B* **23** 126104
- [9] Feltrin A, Freundlich A 2007 *J. Cryst. Growth* **301** 38
- [10] Cheng C W, Liu B, Sie E J 2010 *J. Phys. Chem. C* **114** 3863

Structural and photoluminescence characteristics of ZnCdO/ZnO single quantum well*

Yi You-Gen¹⁾ Wang Yu-Ying¹⁾²⁾ Hu Qi-Feng¹⁾ Zhang Yan-Bin¹⁾ Peng Yong-Yi^{1)†}
Lei Hong-Wen²⁾ Peng Li-Ping²⁾ Wang Xue-Min²⁾ Wu Wei-Dong²⁾

1) (Hunan Key Laboratory for Super-Microstructure and Ultrafast Process, College of Physics and Electronics, Central South University, Changsha 410083, China)

2) (State Key Laboratory for High-Temperature and High-Density Plasmas Physics, Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

(Received 8 October 2015; revised manuscript received 23 December 2015)

Abstract

Zn_{1-x}Cd_xO/ZnO single quantum well is grown by laser molecular beam epitaxy on Al₂O₃(0001) substrate. Single quantum well samples respectively with the well-widths of 1.0 nm, 1.5 nm, 4 nm are obtained by controlling the epitaxial temperature and oxygen pressure in the vacuum chamber. The chemical compositions, surface morphologies, crystal structures of the samples are carefully studied, and the results show that the Zn_{0.98}Cd_{0.02}O single quantum wells are of high quality with very smooth surface (with the root mean square value of 0.6 nm in 20 μm × 20 μm area) and good crystal structure. Quite a strong photoluminescence emission is obtained at 3.158–3.219 eV from the ZnCdO single quantum well at 4 K under a 325 nm He-Cd laser by tuning quantum well-width. The full width of half maximum of the photoluminescence emission peak of the 1.0 nm quantum well reaches 60 meV, which indicates a strong quantum confinement effect.

Keywords: ZnCdO quantum well, photoluminescence, laser molecular beam epitaxy, quantum-confinement effect

PACS: 78.67.De, 32.50.+d, 81.15.Hi, 68.65.Fg

DOI: 10.7498/aps.65.057802

* Project supported by the Foundation of the State Key Laboratory for High-Temperature and High-Density Plasmas Physics, China Academy of Engineering Physics (Grant No. 9140C680501110C6803) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. ZY2015681).

† Corresponding author. E-mail: yougenyi@csu.edu.cn