

极化诱导的内建电场对 Mn δ 掺杂的 GaN/AlGaN 量子阱居里温度的调制*

申 晔¹⁾ 邢怀中²⁾ 俞建国¹⁾ 吕 斌¹⁾ 茅惠兵¹⁾ 王基庆^{1)†}

1) 上海华东师范大学信息学院电子系, 上海 200062)

2) 东华大学物理系, 上海 200051)

(2006 年 7 月 10 日收到, 2006 年 11 月 13 日收到修改稿)

采用传输矩阵方法分析极化诱导的内建电场对 Mn δ 掺杂的 GaN/Al_xGa_{1-x}N 量子阱居里温度(T_C)的调制作用. 通过解薛定谔方程计算出在不同的内建电场条件下半导体量子阱局域态内的基态空穴能级和波函数分布情况, 并在此基础上确定量子阱内 Mn δ 掺杂情况下 T_C 随内建电场的变化趋势, 分析了不同量子阱结构引起的内建电场分布变化及其对 T_C 的影响. 在耦合双量子阱中通过调节左右阱的不对称性可以得到 T_C 近 3 倍的增长.

关键词: GaN, 量子阱, 内建电场, 居里温度

PACC: 7115P, 7280E, 7320D, 7550P

1. 引 言

稀磁半导体材料(DMS)的研究可以追溯到 20 世纪 60 年代, 由于材料样品的生长质量问题, 早期研究主要针对基于 II-IV 族的 DMS^[1]. 近年来 InMnAs^[2]和 GaMnAs^[3,4]等 DMS 的出现使得半导体自旋电子学迅猛发展^[5,6]. 然而 InMnAs 和 GaMnAs 材料的居里温度(T_C)相对较低(分别为 35 和 150 K)^[7,8]. 从实际应用的角度出发, 人们希望材料在较高温度下仍能有效地产生自旋极化载流子. 目前这方面的研究方向有两个, 其一是寻找宽带隙 DMS 材料. Dietl 采用平均场近似从理论上预言了几种可能达到室温的铁磁半导体材料, 如 GaMnN, ZnMnO 等, 目前实验报道 GaMnN 的 T_C 可达 800—900°C^[9]. 另一方面是使用调制掺杂技术在 GaAs/p-AlGaAs 异质结中进行 Mn δ 掺杂, 形成二维空穴气, 通过改变空穴波函数和磁性极化子之间的交叠程度来提高局域范围的 p-d 相互作用强度, 从而提高体系的 T_C . Ahsam 等人使用分子束外延生长了 GaAs(Mn δ 掺杂)p-AlGaAs 材料, 磁输运测量结果表明该材料的 T_C 可达 250 K^[10]. Kim 等人在理论计算中使用外加

电场来调控 Mn δ 掺杂的 GaAs/AlGaAs 双量子阱体系(DQW)与无外加电场情况相比, 体系的 T_C 可以提高近 8 倍^[11].

与 GaAs 类材料相比, GaN 基材料具有很强的压电和自发极化效应^[12], 强的极化效应在材料中建立稳定的内建电场, 因此通过改变极化诱导的内建电场, 可以调控载流子波函数. 如果应用这一极化自由度来调控磁性元素掺杂的 GaN 基材料中的空穴行为, 可以容易地改变体系的 T_C . 目前实验上人们已经成功地在 GaN 材料中完成了 Mn 的 δ 掺杂工作, 并对材料的结构进行了细致的表征^[13]. 然而直到现在, 无论是实验还是理论方面, 很少有工作对 Mn δ 掺杂的 GaN 基材料的磁学性质及其对在极化电场的依赖性进行过深入的探讨. 这方面工作的缺乏使得人们在 Mn δ 掺杂的 GaN 中无法充分利用材料的极化参数来调控系统的磁光和磁电性质. 此外对材料极化性能的研究也可期望在无需外加电场情况下, 仅通过改变内在极化参数来调节 GaN 基低维体系的 T_C . 因此本工作将在 GaAs/AlGaAs 体系中获得成功的 Mn δ 掺杂研究转向 GaN/AlGaN 体系, 着重研究该种材料的磁学性能对于内在极化电场的依赖性. 研究对象是基于 GaN 的耦合双量子阱系统.

* 国家自然科学基金(批准号 60306002)和中国科学院红外物理国家重点实验室资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: jqwang@ee.ecnu.edu.cn

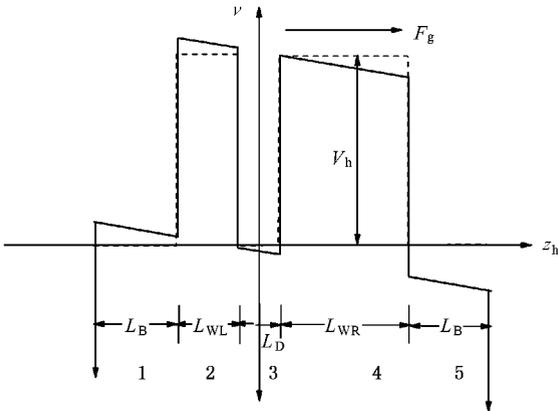


图 1 双量子阱模型价带结构示意图 1,3,5 区域是 $Al_xGa_{1-x}N$ 势垒 区域 2 是 p 型掺杂的 GaN 阱,区域 4 是对在 p 型掺杂的 GaN 阱进行 Mn 的 δ 掺杂, $x = 0.13, V_h = 0.1014 \text{ eV}$

2. 物理模型

根据 DMS 材料的 p-d 相互作用理论, T_C 取决于磁性离子的空间分布和受边界条件限制的载流子在最低子带能级的包络函数,为此我们将建立一个具有确定阱深的不对称 DQW 系统,如图 1 所示.假设量子阱系统左、右阱都进行了 p 型掺杂(载流子浓度 $< 10^{11} \text{ cm}^{-2}$),Mn δ 掺杂位于右阱内.该结构中左、右阱内空穴来源于阱中 p 型掺杂,此外右阱中作为受主的 Mn 也提供一定数量的空穴.在 Nazmul 等人做的 GaAs/AlGaAs 实验中,空穴由掺 Be 的 AlGaAs 势垒进行 Mn δ 掺杂来提供,所以阱内空穴浓度改变的自由度不大^[10].在我们的模型中可以通过调节内建电场大小来调控空穴波函数,由此可以预计在本系统里我们能够灵活地调节 T_C .

系统哈密顿函数由下式给出:

$$H_h = -\partial_{z_h} \frac{1}{m'_h(z_h)} \partial_{z_h} + V_h(z_h) - F_g z_h, \quad (1)$$

这里 $m'_h = m_h^*/m_0$, m_h^* 是空穴有效质量, m_0 是自由电子质量, F_g 是极化诱导的内建电场.内建电场可依据堆积在 GaN/AlGaIn 异质界面处极化电荷的数目计算得出.总的极化电荷^[14]可表示为 $P_{tot} = P_{piezo} + P_{spont}$, P_{piezo} 表示由于晶格失配(mis)和热应变(ts)引起的压电电荷, $P_{piezo} = P_{mis} + P_{ts}$,具体计算可以参考文献[15]; P_{spont} 是 GaN/AlGaIn 异质界面处的自发极化电荷, $P_{spont} = -0.052x - 0.029$

(C/m^2).

内建电场和极化电荷之间的关系为^[14]

$$F_g = L_B(P_{tot}^B - P_{tot}^W) [\epsilon_0(L_W \epsilon_B + L_B \epsilon_W)], \quad (2)$$

ϵ_B, ϵ_W 分别是垒和阱的介电常数, L_B, L_W 对应垒和阱的宽度.计算过程中改变 L_B 或 L_W 数值可以进行调节内建电场的大小.

载流子边界势能为

$$V_h(z_h) = - \begin{cases} V_h, & \text{阱内,} \\ 0, & \text{阱外,} \\ -\infty & z_h \leq -L_D/2 - L_{WL} - L_{B1} \\ & \text{或 } z_h \geq L_D/2 + L_{WR} + L_{B2}, \end{cases} \quad (3)$$

对 $H_h \psi(z_h) = E \psi(z_h)$ 求本征值,方程变为

$$\frac{1}{m'_h} \partial_{z_h}^2 \psi(z_h) - [V_h - F_g z_h - E] \psi(z_h) = 0, \quad (4)$$

假设 $F_g > 0$, 考虑到边界条件

$$\begin{aligned} \psi(z_L) = \psi(z_R) = 0, \\ z_L = L_{B1} + L_{WL} + L_D/2, \\ z_R = L_{B2} + L_{WR} + L_D/2. \end{aligned} \quad (5)$$

用传输矩阵方法可以求解上述系统的波函数和能量本征值((1)–(5)式)^[16].严格来说,我们应当在系统哈密顿量中考虑 p 型掺杂引起的 Hartree 势,通过泊松方程和薛定谔方程来自洽求解结构本征值,然而由于 p 型掺杂浓度($< 10^{11} \text{ cm}^{-2}$)较小,属于低载流子浓度范围,在计算中可以忽略不计^[17].根据铁磁半导体理论,系统总的哈密顿量中还应包括磁性离子和价带空穴之间的相互作用

$$H_{pd} = -J_{pd} \sum_i s_i \cdot S_j \delta(r_i - R_j),$$

J_{pd} 为自由载流子和磁性离子间的交换能, s_i 和 S_j 分别表示自由载流子和磁性离子的自旋算符.使用平均场近似理论可以计算该体系的居里温度,详细的讨论可参考文献[18], T_C 可用如下公式表示^[18]:

$$T_C = \frac{S(S+1)}{12k_B} J_{pd}^2 \rho_d(\epsilon_F) \int dz_h |\psi(z_h)|^4 \alpha(z_h), \quad (6)$$

$\alpha(z_h)$ 是磁性离子分布函数,费米能级上载流子密度可以表示为

$$\rho_d(\epsilon_F) = \pi^{1-d} (2/\pi)^{d-2} \chi_{d-3}^2 m^* k_F^d / \hbar^2, \quad (7)$$

d 是体系维度, k_F 是费米能级对应的波矢.

将传输矩阵方法求出的波函数带入(6)和(7)式中即可求得体系的 T_C .由于我们讨论的是不同内建电场下 T_C 的比值,所以在(6)式的计算中不需要精确的 S 和 J_{pd} 数值.

3. 结果讨论

我们选取 GaN/Al_xGa_{1-x}N 体系的物理参数如表 1 所示,计算中选取 $x = 0.13$,对应边界限制势能 $V_h = 0.1014$ eV,价带空穴有效质量 $m'_h = 1.9901$.

表 1 计算中所用到的参数

	Al _x Ga _{1-x} N
静态介电常数 ^[14] ϵ_0	10.4 - 0.3x
晶格常数 ^[14] a/nm	0.3189 - 0.0077x
能带隙 ^[19] E_g/eV	6.28x + 3.50(1-x) - 0.6x(1-x)
m_h^*/m_0 ^[20]	3.53x + 1.7(1-x)
价带不连续 V_h ^[21] $/\text{eV}$	0.78x

首先计算单量子阱(SQW)内建电场对体系铁磁性能的影响.图 2 表示 SQW 阱宽为 2.0 nm 时 T_C 随垒宽(L_B)的变化趋势,该图纵坐标中 T_{COI} 是该 SQW 在不考虑内建电场情况下的 T_C .这里可以将 SQW 认为是 DQW 取极限的情况,左边阱先不作考虑($L_{\text{WL}} = 0$).其他参数选取如下:计算中 L_B 从 3.0 nm 开始变化, $L_D = 1.0$ nm, $L_{\text{WR}} = 2.0$ nm,图中两条曲线分别代表 Mn δ 掺杂位于阱内不同位置, T_{edge} 表示 Mn δ 掺杂在阱内 3/4 处, $c(z_h) = \delta(z_h + 3/4L_{\text{WR}} + L_D/2)$, T_{center} 表示 Mn δ 掺杂在阱内 1/2 处, $c(z_h) = \delta(z_h + 1/2L_{\text{WR}} + L_D/2)$.

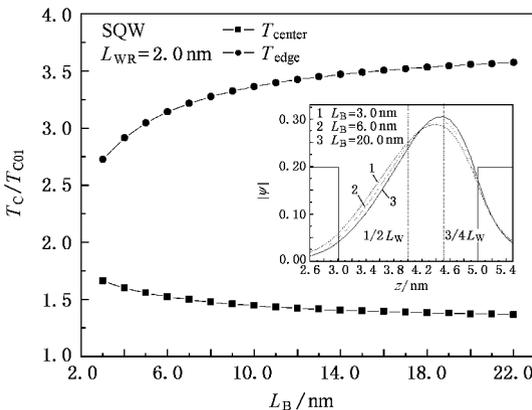


图 2 单量子阱阱宽为 2.0 nm 时 T_C/T_{COI} 随势垒宽度变化曲线 L_B 表示左右势垒的宽度,其中正方形表示 Mn 在中心点处 δ 掺杂居里温度,圆形表示 δ 掺杂位于边缘点处居里温度. T_{COI} 为不考虑电场情况下的居里温度

从图 2 可以看出, T_{edge} 随着垒宽增加而增加,开始时增长速度较快,在垒宽接近 9.0 nm 时达到饱和,而另一方面 T_{center} 随着垒宽增加而减小,同样在

垒宽接近 9.0 nm 时达到饱和.通过比较 T_{edge} 和 T_{center} 我们发现 T_{edge} 始终大于 T_{center} .为了解释两者不同的变化趋势,我们在图中嵌入不同垒宽下阱内的空穴波函数,垒宽分别选取 3.0,6.0 和 20.0 nm,可以看到随着垒宽增加,对应波函数最大值也增加.原因是当我们增加垒宽时,也相应增加了量子阱中的内建电场,在电场作用下空穴向阱右边移动,从而使得阱内 3/4 处空穴浓度增加,导致该处 T_C 始终大于阱内 1/2 处的 T_C .从这里可以看出,与 Kim 等使用外加电场来调控 Mn δ 掺杂的 GaAs/AlGaAs 体系不同^[11],GaN/AlGaIn 体系不需要外加电场,只需改变生长参数就可以达到调节 T_C 的目的.

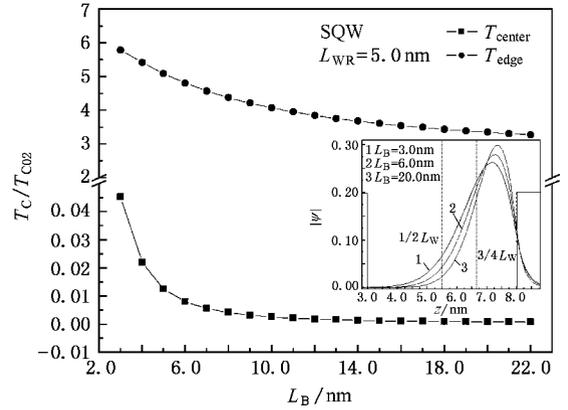


图 3 单量子阱阱宽为 5.0 nm 时 T_C/T_{COI} 随势垒宽度变化曲线

图 3 表示的是将 SQW 阱宽增加到 5.0 nm 时 T_C/T_{COI} 随垒宽的变化趋势,与图 2 有所不同的是, T_{edge} 和 T_{center} 都随着垒宽增加而减小,其中 T_{center} 逐渐减小接近于零,而 T_{edge} 虽然也减小但一直大于 T_{center} .当垒宽从 22.0 nm 减小到 3.0 nm 时, T_{edge} 可以增加近 1.5 倍.同理我们在图 3 中嵌入相应的波函数,垒宽选取同上.从图中我们可以看到在内建电场作用下,空穴分布向阱右边继续移动,与图 2 中三个波函数最高点位置都非常接近于阱内 3/4 处不同,在阱宽为 5.0 nm 条件下,三个波函数的最高点都向右越过阱内 3/4 处,位于阱内 3/4 处和右边势垒之间,且三个波函数最高点进一步不重合,可见波函数的移动空间变大,这也就使得 T_{edge} 和 T_{center} 都随垒宽增加而减小.另外我们发现随着量子阱阱宽增加,载流子隧穿进入势垒的概率减小,大部分都停留在阱内.综合图 2 和图 3 可以发现内建电场大小对于样品结构有很强的依赖性,而且量子限域范围也影响着 δ 掺杂位置处波函数的大小,因此调制掺杂体系

的铁磁相变温度很大程度上取决于材料结构参数以及 Mn δ 掺杂位置.

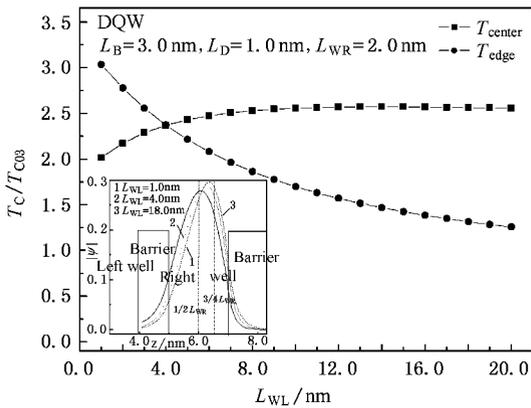


图 4 双量子阱结构中右阱 T_C/T_{C03} 随左阱宽度变化曲线

然而在 DQW 系统中 T_C 又有新的变化趋势,图 4 是 DQW 结构中右阱 T_C/T_{C03} 随着左阱宽度的变化趋势,在 DQW 条件下,随着 L_{WL} 增加, T_{edge} 逐渐减小, T_{center} 逐渐增大,在 L_{WL} 小于 4.3 nm 之前, T_{edge} 大于 T_{center} ,但此后 T_{center} 逐渐增大并超过 T_{edge} . 为了解释这一变化,我们也对波函数进行了分析,分别选择 $L_{WL} = 1.0, 4.0$ 和 18.0 nm. 随着 L_{WL} 增加,对应波函数最高点出现左移,越来越靠近右阱中心点 $1/2$ 处,进行 Mn δ 掺杂的中心点处于波函数的上升阶段,且随着 L_{WL} 增加,对应波函数值越来越大;而边缘掺杂处于波函数下降阶段,随着 L_{WL} 增加,对应波函数值越来越小. 这里可以看到,在 DQW 条件下,减小左阱宽度或提高右阱 p 型掺杂浓度对 T_C 的调节效果是一样的,当我们将左阱宽度从 20.0 nm 减小到 2.0 nm 的过程中, T_{edge} 可以提高近 3 倍. 这种变化趋势是内建电场和空穴隧穿共同作用的结果. 与 SQW 不同,在耦合 DQW 中由于 L_{WL} 增加,量子隧穿

效应导致右阱空穴隧穿中间势垒概率增大,使得空穴开始向逐渐变宽的左阱移动. 然而如果不考虑内建电场作用,这种由量子阱不对称性所导致的波函数的移动(对应居里温度的变化)并不很明显. Kim 等人计算了 GaAs/AlGaAs 不对称耦合量子阱中左右阱的宽度对材料居里温度的影响,发现改变两边阱的不对称性,体系的居里温度可以提高近 20%^[11]. 但是在 GaN 体系中,强的内建电场增强了这种变化. 我们的计算表明当左阱宽度从 20.0 nm 减小到 2.0 nm 时,材料的内建电场可以提高近 5 倍,强的电场增强了量子阱的斯塔克效应,从而导致居里温度的大幅度提高. 实验上虽然对 Mn δ 掺杂的 GaN 量子阱材料磁性研究目前尚未有报道,但是这种由内建电场而导致的 GaN 体系的能级和波函数的较大变化在荧光实验中已有广泛地报道^[22, 23]. 虽然是两种不同的研究方向,考虑到本质上都是通过内建电场对波函数的调制作用,因而这些实验可以间接的证明我们的理论预测. 更重要的是我们的计算表明与 GaAs 体系不同,通过改变内建电场可以明显调节 GaN 量子阱材料的居里温度,增加了调制的自由度.

4. 结 论

综上所述,我们利用内建电场和量子阱的不对称性来调节 Mn δ 掺杂的 GaN/AlGaIn 体系的 T_C . 在 Mn δ 掺杂 SQW 中,可以改变垒宽来控制内建电场的大小,最终达到调节 T_C 的目的. 然而对于不同的阱宽,内建电场对 T_C 调制有明显不同的效果. 与 SQW 相比,在 DQW 中还可以通过改变左右阱的不对称性来调节内建电场,增加了 T_C 调节的自由度. 通过调节左阱宽度对 Mn 边缘 δ 掺杂的 T_C 可以提高近 3 倍.

- [1] Furdyna J K 1988 *J. Appl. Phys.* **64** R29
 [2] Munekata H, Ohno H, Molnar S V, Segmüller A, Chang L L, Esaki L 1989 *Phys. Rev. Lett.* **63** 1849
 [3] Ohno H, Shen A, Matsukura F, Oiwa A, Endo A, Katsumoto S, Iye Y 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 363
 [4] Guo X G, Chen X S, Sun Y L, Zhou X H, Sun L Z, Lu W 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3543 (in Chinese) [郭旭光、陈效双、孙沿林等 2004 物理学报 **53** 3543]
 [5] Prinz G A 1998 *Science* **82** 666

- [6] Song H Z, Zhang P, Duan S Q, Zhao X G 2006 *Chin. Phys.* **15** 3019
 [7] Matsukura F, Ohno H, Shen A, Sugawara Y 1998 *Phys. Rev. B* **57** 2037
 [8] Ku K C, Potashnik S J, Wang R F, Chun S H, Schiffer P, Samarth N, Seong M J, Mascarenhas A, Johnston-Halperin E, Myers R C, Gossard A C, Awschalom D D 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 2302
 [9] Reed M L, El-Masry N A, Stadelmaier H H, Rütums M K, Reed M J, Parker C A, Roberts J C, Bedair S M 2001 *Appl. Phys. Lett.*

- 79 3473
- [10] Nazmul A M , Amemiya T , Shuto Y , Sugahara S , Tanaka M 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 017201
- [11] Kim N , Lee S J , Kang T W 2004 *Phys. Rev. B* **69** 115308
- [12] Cingolani R , Botchkarev A , Tang H , Morkoc H , Traetta G , Coil G , Lomaschlo M , Carlo A D , Sala F D , Lugli P 2000 *Phys. Rev. B* **61** 2711
- [13] Cui Y , Lazorov V K , Goetz M M , Liu H , Robertson D P , Gajdardziska-Josifovska M , Li J 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 4666
- [14] Bonfiglio A , Lomascolo M , Traetta G *et al* 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 2289
- [15] Litvinov V I 2003 *Phys. Rev. B* **68** 55314
- [16] Fu Y , Lu W 2005 *Physical Models of Semiconductor Quantum Devices* (Bei Jing Sciencep) p312 [傅 英 , 陆 卫 2005 半导体量子器件物理 (北京 科学出版社) 第 312 页]
- [17] Johnson L , Vassell M O , Koteles E S , Elman 2003 *Phys. Rev. B* **39** 10133
- [18] Lee B , Jungwirth T B , MacDonald A H 2000 *Phys. Rev. B* **61** 15606
- [19] Steude G , Christmann T , Meyer B K , Göldner A , Hoffmann A , Bertram F , Christen J , Amano H , Akasaki I 1999 *MRS Internet J. Nitride Semicond. Res.* **4S1** G3.26
- [20] Suzuki M , Uenoyama T 1995 *Phys. Rev. B* **52** 8132
- [21] Martin G , Botchkarev A , Rockett A , Morkoc H 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 2541
- [22] Shin E J , Li J , Lin J Y , Jiang H X 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 1170
- [23] Park Y S , Lee S H , Oh J E , Park C M , Kang T W 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 4478

Curie-temperature modulation by polarization-induced built-in electric fields in Mn δ -doped GaN/AlGaN quantum wells^{*}

Shen Ye¹⁾ Xing Huai-Zhong²⁾ Yu Jian-Guo¹⁾ Lü Bin¹⁾ Mao Hui-Bing¹⁾ Wang Ji-Qing^{1)†}

¹⁾ The Department of Electronic Science and Engineering , East China Normal University , Shanghai 200062 , China)

²⁾ The Department of Applied Physics , Donghua University , Shanghai 200051 , China)

(Received 10 July 2006 ; revised manuscript received 13 November 2006)

Abstract

Transfer matrix method has been used to analyze Curie-temperature (T_C) modulation by polarization-induced built-in electric fields in Mn δ -doped GaN/AlGaN quantum wells. Schrödinger equation is employed to calculate the quantum-confined subband energies and the distribution of their corresponding envelope functions. Based on these , we investigate the dependence of T_C on the built-in electric fields in different structures of quantum well. By changing the asymmetry of double quantum wells (DQW) , T_C can be raised up to 3 times.

Keywords : GaN , quantum well , built-in electric fields , Curie-temperature

PACC : 7115P , 7280E , 7320D , 7550P

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60306002) and National Laboratory for Infrared Physics , Shanghai Institute of Technical Physics , Chinese Academy of Sciences.

[†] Corresponding author. E-mail : jiqwang@ee.ecnu.edu.cn