

离子注入调制掺杂 V 形槽 GaAs/AlGaAs 单量子线光电性质*

黄少华 陈张海** 柏利慧 王防震 沈学础

(复旦大学物理系, 应用表面物理国家重点实验室, 上海 200433)

摘要 低温显微偏振光致发光谱的测量表明, 经选择性 As^+ 离子注入和快速退火后, V 形槽量子线表现出良好的一维量子限制效应, 其光致发光呈现约 63% 的线性偏振度; 对量子线样品的低温磁阻测量亦表明, 经选择性 As^+ 离子注入和快速退火后, 准一维量子线表现出良好的一维输运特性.

关键词 V 形槽 GaAs/AlGaAs 量子线 离子注入 光致发光 偏振 磁阻

准一维量子线(QWR)在光电器件应用和基础研究方面具有巨大前景^[1,2]. 在非平面衬底上自组织外延生长的V形槽GaAs/AlGaAs量子线由于其制备工艺简单、界面优良以及晶格匹配的特点而被广泛研究^[3~5]. 在V形槽衬底上自组织外延生长GaAs/AlGaAs量子线的过程中, 除了由于衬底非平面特性以及Ga, Al原子扩散长度的不同而导致了在V形槽底部形成量子线之外, 还因各种晶面的共存而形成了不同类的共生量子阱结构^[6]. 这些共生量子阱结构降低了量子线对电子的俘获效率, 同时致使量子线样品的发光光谱具有多峰位复杂结构. 因为量子线区域的量子限制主要来自于线区域势阱和势垒的能带差以及近邻量子阱的限制能力, 所以为了在量子线区域获得尽可能大的量子限制, 在追求小尺寸量子线的同时, 必须尽量抑制这些复杂的共生二维量子阱结构. 选择性离子注入可以是一种行之有效的方法^[7]. 但目前相关的报道, 尤其是选择性离子注入对量子线光电特性的改善的研究还很少^[8].

在本文中, 我们报道了选择性 As^+ 离子注入和快速退火(RTA)对 V 形槽 GaAs/AlGaAs 量子线一维特性的改善. 显微光致发光谱(Micro-PL)研究表明, 选

2004-10-26 收稿, 2005-01-18 收修改稿

* 国家自然科学基金(批准号: 10374018, 10321003)和上海市科委重大基础研究基金(批准号: 03DJ14001)资助项目

** 联系人, E-mail: zhanghai@fudan.edu.cn

择适当的离子注入角度(方向)可在摧毁共生量子阱结构的同时避免量子线区域的离子注入,并经快速退火后可显著提高量子线对光生载流子的俘获效率,甚至在室温下仍可清晰分辨来自于量子线的发光信号;在对量子线的偏振光致发光谱(PL)的研究中,我们观察到其光致发光谱线呈现约63%的线性偏振度;对 QWR 样品低温磁阻测量表明,经选择性离子注入和快速退火后,准一维量子线表现出良好的一维输运特性.

1 实验

实验所用样品通过下述方法制备:首先在 GaAs(100)半绝缘衬底上用标准光刻和湿法化学刻蚀形成沿(01-1)方向且周期为 $4\text{ }\mu\text{m}$ 的 V 形槽;然后用低压金属有机物化学气相淀积法依次外延生长约 $0.2\text{ }\mu\text{m}$ GaAs 缓冲层, $1\text{ }\mu\text{m}$ $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 下势垒层, Si δ -调制掺杂层, 10 nm $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 层, 6 nm GaAs 势阱层, $0.2\text{ }\mu\text{m}$ $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 上势垒层,最后生长 10 nm GaAs 覆盖层.

在室温下采用自准直选择性离子注入技术^[9],对上述样品进行后处理:即在 500 keV 下,分别将 10^{11} cm^{-2} , 10^{12} cm^{-2} , 10^{13} cm^{-2} 剂量的 As^+ 离子沿与衬底法向夹角 $\pm 50^\circ$ 自准直注入侧面量子阱,然后进行 30 s 的 900°C 快速退火.

室温 Micro-PL 测量是用 Ar^+ 激光器的 514.5 nm 激发线作激发源,激发功率约为 25 mW ,经显微物镜聚焦后,在样品表面的激发光斑直径约 $1\text{ }\mu\text{m}$.

测量变温光致发光谱时,量子线样品被放置在闭循环制冷器的冷头上,温度变化范围为 $14\sim 215\text{ K}$,激发源采用 He-Cd 激光器的 441.6 nm 谱线,激发功率约为 20 mW ,样品表面激发光斑大小约为 $200\text{ }\mu\text{m}$,光场电矢量方向平行于量子线;发光信号通过三光栅单色仪分光后由 GaAs 光电倍增管探测.

2 结果及讨论

2.1 显微光致发光谱

测得典型的量子线样品的 PL 光谱如图 1 所示.为指认来自 V 形槽区域中各量子结构的发光谱线,激发光斑由聚焦在量子线区域中央逐渐扫描到外围平面量子阱区域.因样品表面激发光斑大小约 $1\text{ }\mu\text{m}$,而量子线样品的线间间距约 $4\text{ }\mu\text{m}$,所以由显微荧光光谱测量并考虑样品结构以及对照相应的理论计算^[10]我们能清楚分辨出来自量子线区域的发光谱线.

由 Micro-PL 谱的分析发现,当激发光斑聚焦在量子线区域中央(图 1(a))时,光致发光谱主要由 4 个发光谱线组成.经 Gauss 线型拟合确认其分别位于 1.572 , 1.668 , 1.760 , 1.841 eV 处,并且谱峰位于 1.572 eV 处的发光谱线最强.当激发光斑聚焦在顶部量子阱(图 1(b))时,谱峰位于 1.572 , 1.760 , 1.841 eV 的发光谱线积分强度强烈衰减,而谱峰位于 1.668 eV 处的发光谱线最强.因而可指认谱峰位于

1.668, 1.760, 1.572 eV 处的发光谱线分别来自侧面量子阱(SQWL)、垂直量子阱(VQWL)和 QWR¹⁾。当激发光斑聚焦在顶部量子阱时也可看到来自 VQWL 和 QWR 的发光信号, 这是因激发光斑在 V 形槽表面的散焦所致。

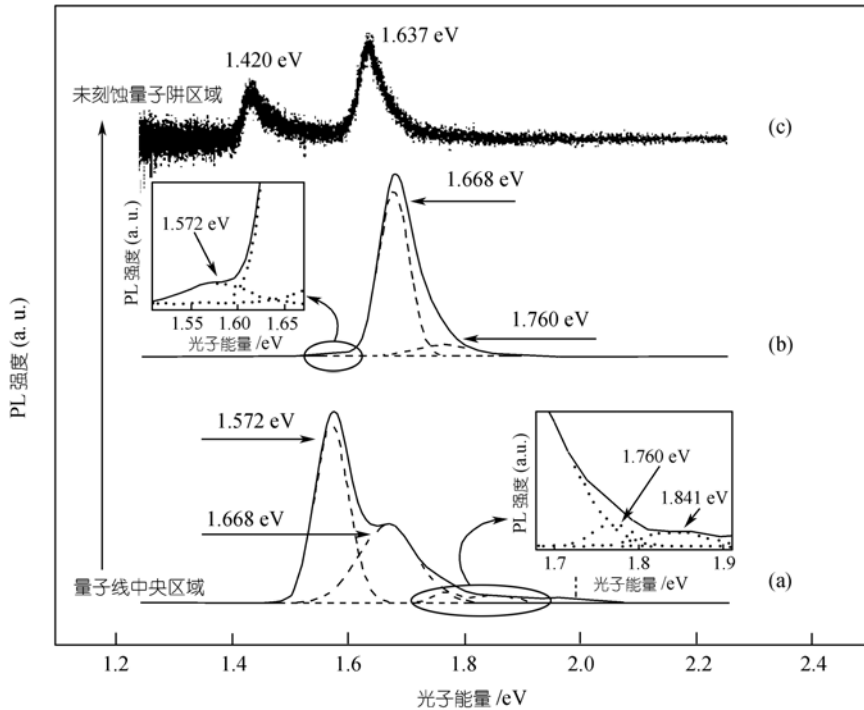


图 1 注入剂量为 10^{13} cm^{-2} 的 QWR 样品的室温显微光致发光谱

激发光斑由聚焦在量子线区域中央逐渐扫描到未刻蚀平面量子阱区域。以 Ar^+ 激光器 514.5 nm 激发线为激发源, 样品表面激发光斑大小约为 $1 \mu\text{m}$ 。图(a)~(c)分别是激发光斑聚焦在量子线区域、顶部量子阱区域和未刻蚀平面量子阱区域的 PL 谱。点线是实验曲线, 实线是 Gauss 线型拟合曲线。插图是箭头所指谱图的局部放大图

由样品的透射电子显微镜(TEM)照片可估计 V 形槽量子线的侧向势阱宽度约 20 nm; 用微扰方法经简单理论计算^[10], 估计基态激子跃迁能 $E_1^{\text{Theo}} = 1.571 \text{ eV}$, 这与我们显微荧光实验所测得的量子线的荧光峰位 $E_1^{\text{Exp}} = 1.572 \text{ eV}$ 吻合得相当好, 进一步确认了源于准一维量子线的发光谱线。

为研究 As^+ 离子注入剂量的不同对量子线光学性质的改善, 我们依次对经不同剂量 As^+ 离子注入和退火后的样品中量子线区域和侧面量子阱区域分别测量 Micro-PL, 测得的光谱如图 2 所示。对于未经离子注入处理的量子线样品, 由于量子线区域近邻量子阱强发光信号的掩盖致使在室温下几乎无法分辨出来自量

1) 李志锋. 几种半导体功能材料的光谱研究(博士论文). 中科院上海应用技术物理研究所. 2001, 45 ~ 53

子线区域微弱的发光信号;而对经离子注入和快速退火后的样品,来自量子线区域的 PL 信号清晰可辨.随着注入剂量的增加,来自量子线区域的 PL 积分强度几乎单调增大,而 VQWL 和 SQWL 的发光强度先增大又快速衰减,同时谱峰位置随着注入剂量的增加显著蓝移(如图 2 中的插图所示).这说明在 As^+ 注入的过程中,一方面由于离子注入引起注入区域的非辐射损伤和注入离子的扩散致使注入区域的光激发效率强烈衰减;同时离子注入和退火导致了界面混合(互扩散)效应,这增加了 SQWL 和 VQWL 的子带能量,从而提高了 QWR 对光生载流子的量子限制能力.所以通过离子注入和退火,抑制了量子线样品中光生载流子在 SQWL 和 VQWL 区域中的布居,更多的光生载流子未来得及在 SQWL 和 VQWL 中复合就迟豫到 QWR 区域复合发光,因而我们可以清晰分辨出来自 QWR 区域的发光信号.

2.2 偏振光致发光光谱

相对二维量子阱而言,量子线与激发光场相互作用的一个显著特点是,当激发光是线偏振时,量子线的光学性质表现出强烈的各向异性^[11],这已被归结为量子线准一维特性的指纹特征^[12].

我们研究了量子线与激发光场电矢量的相互作用,图 3(a)给出了激发光场电矢量方向与量子线方向不同夹角时的室温光致发光谱.可以发现随着入射激发光电矢量与量子线夹角的逐渐增大,谱峰位于 1.572 eV 处的量子线发光谱线积分强度单调衰减,这说明光场在平行于量子线方向有最充分的相互作用.量子线发光积分强度随光场电矢量沿量子线方向分量的减小而迅速衰减,说明量子线激子基态 $1e-1hh$ 的跃迁在光场电矢量沿量子线方向时较强,而在垂直于量子线时是‘禁戒’的;但由于实际的 QWR 中准一维的不完全量子限制,载流子并不是严格地受限在一个维度上,因此我们在垂直方向依然可观察到光跃迁^[13].图中还可看到侧面量子阱也表现出对入射光电场的响应具有各向异性,这与衬底非平整表面及应力行为有关.

定义光致发光的线性偏振度为 $P=(I_{\parallel}-I_{\perp})/(I_{\parallel}+I_{\perp})$,其中 $I_{\parallel}$ 和 $I_{\perp}$ 分别是偏振方向平行和垂直于量子线的光致发光积分强度.图 3(b)给出了经离子注入后量子线线性偏振度的改善.

如图 3(b)所示,对于未经离子注入的样品,发现自于量子线区域的光致发光信号具有 52% 的线性偏振度,但经 $10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{As}^+$ 离子注入后,其线性偏振度增加到 63%.这可能一方面是由于离子注入增加了量子线区域对载流子的量子限制能力,从而提高了其一维限制效应;同时也说明快速退火改善了量子线的界面质量,减少了因界面缺陷及沿量子线的线宽涨落而引起的局域效应^[14,15].因为这种局域效应可使一维激子波函数趋向对称,从而降低了其线性偏振度.

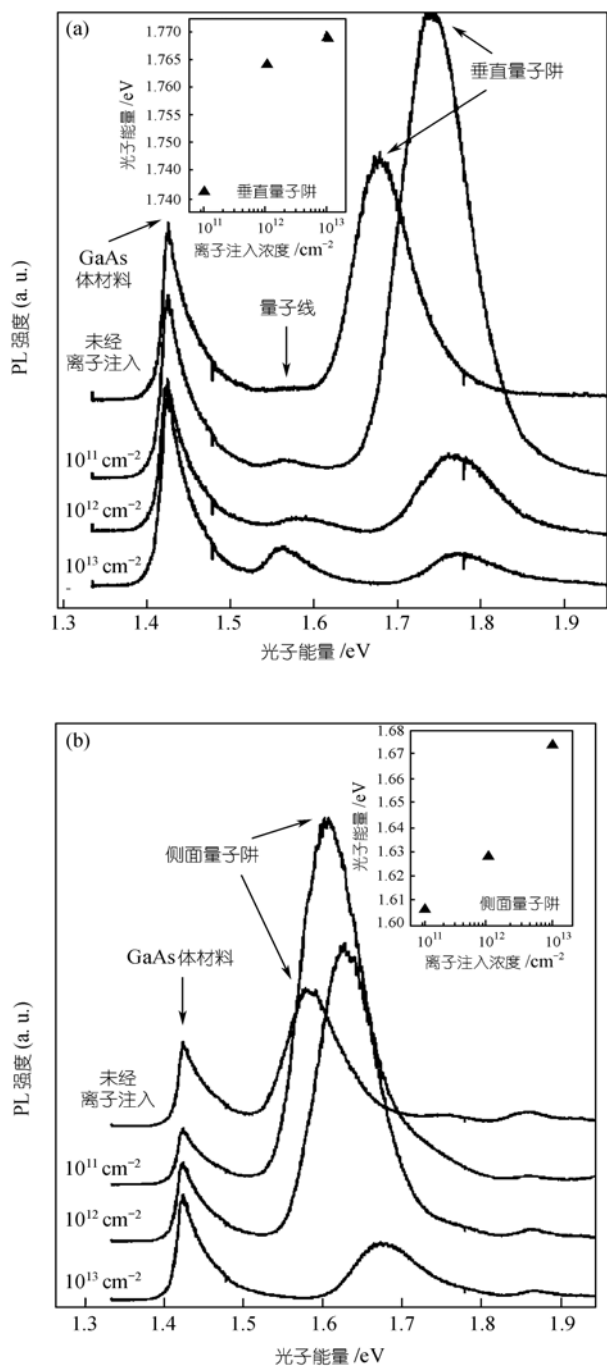


图 2 室温下经不同剂量 As^+ (10^{11} , 10^{12} , 10^{13} cm^{-2}) 离子注入后的量子线样品的显微 PL 谱 (a) 量子线区域; (b) 侧面量子阱区域. 插图分别给出了来自 VQWL 和 SQWL 的发光谱线峰位随掺杂剂量的变化关系. 未经后处理的 QWR 样品 PL 谱做参考

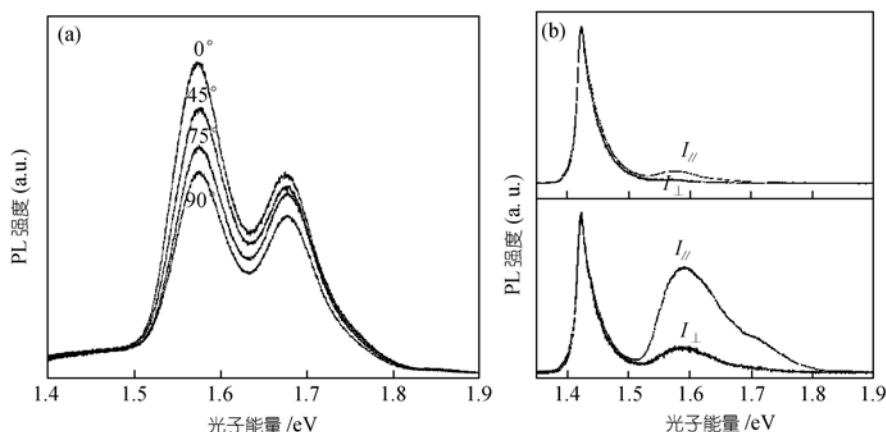


图 3

(a) 注入剂量为 10^{13}cm^{-2} 的量子线样品的室温显微光致发光谱. 在 GaAs(100) 面内入射激发光电矢量方向由沿平行于量子线方向逐渐转动到垂直量子线方向. Ar^+ (514.5 nm) 为激发源, 激发功率为 25 mW; (b) 未经离子注入和离子注入剂量为 10^{13}cm^{-2} 的量子线样品的室温偏振光致发光谱, 其中 $I_{||}$ 和 $I_{\perp}$ 分别定义为偏振方向平行和垂直于量子线时的光致发光积分强度

2.3 变温光致发光谱

在三维半导体材料中, 激子向非辐射复合中心的扩散使激子非辐射衰减在其发光中占主导地位, 并随着温度的升高越来越强烈. 在量子线中, 二维空间的量子限制减少了激子到达非辐射复合中心的几率, 从而提高了量子线的发光效率.

图 4 给出了 QWR 在温度范围 14~215 K 内的 PL 光谱. 由图 4 可发现, 当温度由 14 K 升高到 215 K 时, 明显观察到 QWR 发光谱线峰位约 30 meV 的红移, 这主要是由于带隙随温度的升高而减小; 同时自由激子与声子的相互作用导致了发光谱峰的线宽展宽. 我们对发光谱线进行了 Gauss 线型拟合. 在 14 K 时, 量子线的半高展宽 (FWHM) 约为 28.0 meV, 说明经离子注入和快速退火后量子线样品依然具有较好的质量均匀性. 由于离子注入导致界面非辐射损伤效应, 来自 SQWL 的发光强度随温度的增加衰减得非常快. 通过对发光谱线的拟合, 可获得一维带隙随温度的变化, 如图 5(a) 所示. 可以发现, 准一维带隙的温度依赖关系基本上遵从 Varshni 经验公式^[16], 即 $E(T) = E(0) - \alpha T^2 / (\beta + T)$. 图 5(a) 中同时给出了 Varshni 公式对实验数据的拟合结果. 随着温度的升高, 量子线的带隙变化表现出与 GaAs 体材料相似的趋势.

自由激子的线宽展宽可由半经验公式 $\Gamma_{\text{exc}}(T) = \Gamma_0 + \gamma_{\text{AC}} T + \gamma_{\text{LO}} / [\exp(E_{\text{LO}}/k_B T) - 1]$ 来描述^[17] (如图 5(b) 所示), 其中 Γ_0 是 Gauss 非均匀展宽部分, 与温度无关; 第二项和第三项分别是由于声学声子和光学声子散射引起的谱线均匀展宽, 取 GaAs 的

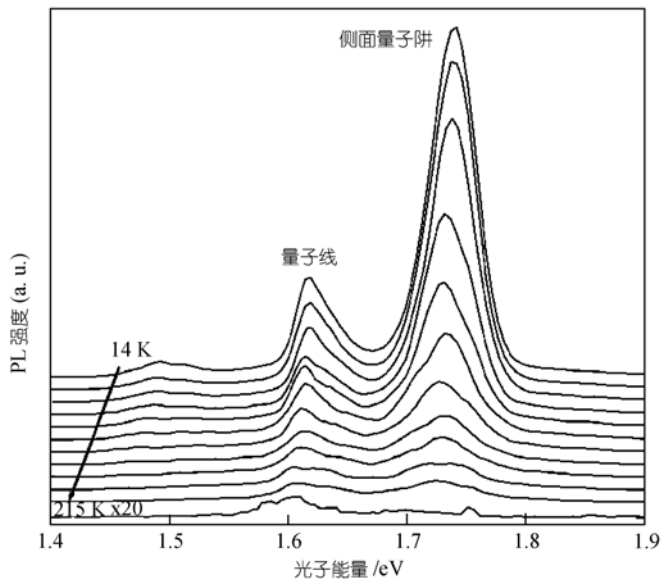


图 4 As^+ 注入剂量为 10^{13}cm^{-2} 的量子线样品光致发光谱线随温度的变化
He-Cd 激光器 441.6 nm 谱线为激发源, 激发功率约为 20 mW, 样品表面激发光斑大小约为 200 μm

E_{LO} 为 36.6 meV. 与量子阱相比, QWR 的谱线线宽主要由 Γ_0 决定, 当温度高于 65 K 时谱线的展宽主要来自于 LO 声子的散射 ($\gamma_{\text{LO}}=0.2882$ eV, $\gamma_{\text{AC}}=0.00001$ eV, $\Gamma_0=0.0285$ eV). 这说明经过离子注入和退火处理后的量子线表现出非常好的一维特性和温度的稳定性.

2.4 磁输运测量

我们通过对两种配置下量子线磁阻的测量, 研究了量子线中准一维电子的磁场行为. 实验结果如图 6 所示. 实验表明, 在两种配置的情况下, 均未看到类似于二维电子气磁阻的振荡现象^[18,19], 说明我们的样品中SQWL和VQWL区域没有足够的自由载流子浓度. 同时, 也由于离子注入的影响, SQWL和VQWL中载流子的迁移率较小, 导致我们未能观察到磁阻振荡现象. 当样品转轴在衬底平面内垂直于量子线方向(如图 6(a)所示), 并且磁场方向垂直于QWR时($\theta=0$), 随着外加磁场增强, 至 $B \approx 5\text{T}$ 时, 磁阻出现极大值. 当量子线的方向相对于磁场方向转动角度 θ 小于 45° 时, 磁阻随磁场的增强(0~11T范围内)均出现极大值, 并且随着 θ 的增大, 磁阻极大值出现在 $5/\cos(\theta)$ 处. 这种现象的发生是由电子在磁场中的回旋运动和电子在量子线的界面处强烈散射两种效应共同作用的结果. 当电子的平均自由程和量子线的横向尺寸相当时, 此时电子的界面散射最强, 因而

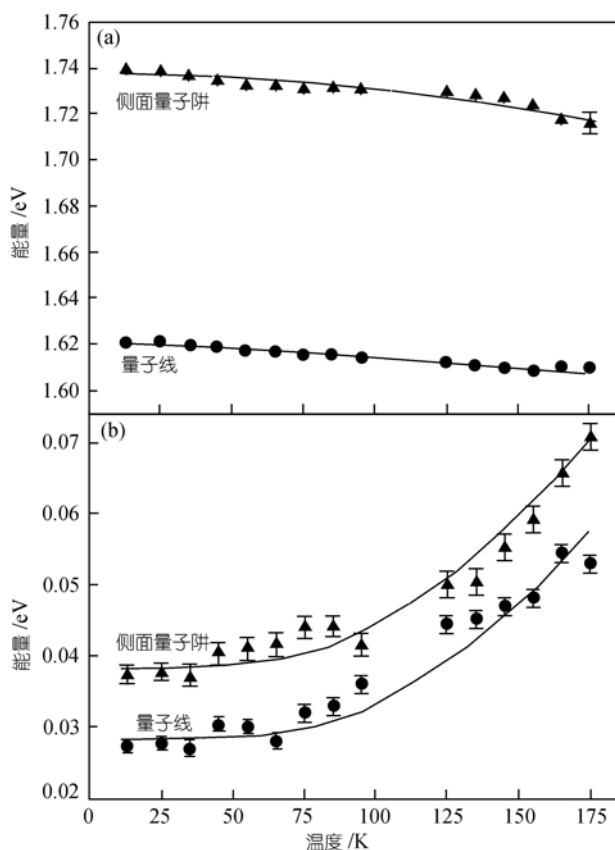


图 5

(a) 量子线中基态激子 PL 峰值随温度的变化, 实线是利用体材料 Varshni 关系拟合线; (b) 由于 LO 声子和激子的散射导致的谱线线宽展宽的 FWHM 随温度的变化

磁阻最大. 当磁场相对于 QWR 转动时, 量子线方向与磁场相对角度的变大, 由于垂直于量子线方向的有效磁场分量减小, 磁阻极大值出现在强场方向. 当量子线沿磁场方向时 ($\theta = 90^\circ$), 磁阻随磁场的增大几乎单调线性增加. 当样品转轴沿量子线方向时, 如图 6(b)所示, 磁场增大到约 5 T 时磁阻达到最大值. 在转动样品的过程中, 此时 QWR 的方向始终垂直于外加磁场, 而 SQWL 和 VQWL 相对于磁场方向随着样品的转动在改变, 但出现磁阻最大值的磁场强度几乎与角度无关, 这表明样品的输运行为主要来自于 QWR 中的电子. 这进一步说明, 经选择性离子注入和退火后, 量子线样品表现出优良的一维特性.

3 结论

调制掺杂 V 形槽 GaAs/AlGaAs 量子线的光致发光谱和磁阻实验研究表明,

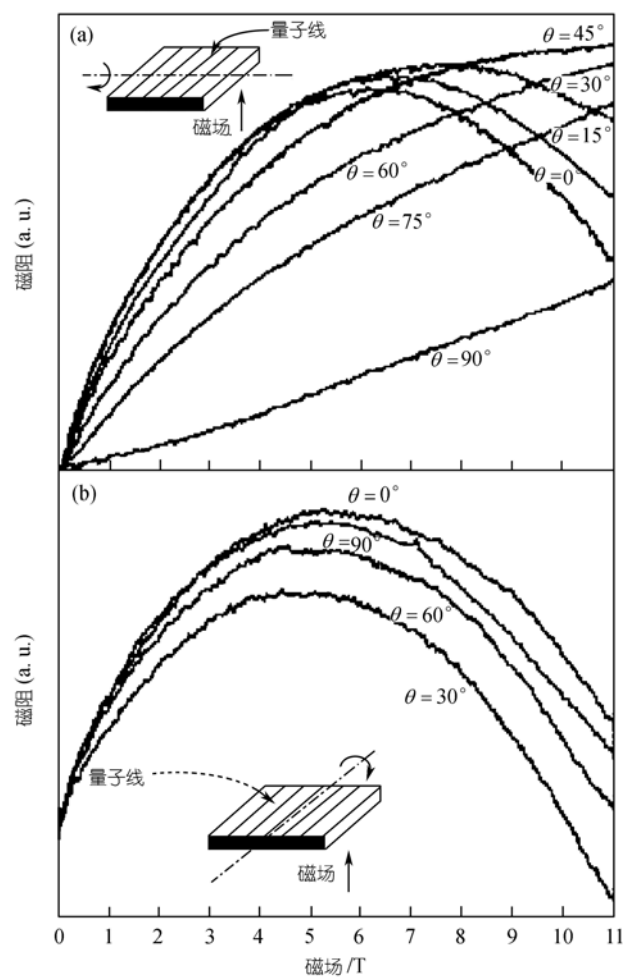


图 6 在 4.2 K 温度下, As^+ 注入剂量为 10^{13} cm^{-2} 的量子线样品在两种配置下的磁阻变化线
(a) 样品转轴位于衬底平面内, 垂直于量子线方向; (b) 样品转轴位于衬底平面内, 沿量子线的方向

经选择性离子注入和快速退火后, 量子线对光生载流子的量子限制能力得到了显著的提高, 并表现出良好的一维特性. 由于一维量子限制特性的改善, 我们观察到, 经离子注入并热退火处理后, 量子线样品具有明显的光跃迁各向异性. 同时, 对样品的磁输运测量亦表明, 经离子注入和热退火处理后, 对磁阻效应的主要贡献来自准一维量子线中的载流子.

参 考 文 献

1 沈学础. 半导体光谱和光学性质. 第二版. 北京: 科学出版社. 2002. 695~719

- 2 Biasiol G, Kapon E, Ducommun Y, et al. Self-ordering of quantum-wire superlattices on V-grooved substrates. *Phys Rev B*, 1998, 57: R9416 ~ R9419 [\[DOI\]](#)
- 3 Oberli D Y, Dupertuis M A, Reinhardt F, et al. Effect of disorder on the emperature dependence of radiative lifetimes in V-groove quantum wires. *Phys Rev B*, 1999, 59: 2910 ~ 2914 [\[DOI\]](#)
- 4 Sirigu L, Oberli D Y, Degiorgi L, et al. Excitonic lasing in Semiconductor quantum wires. *Phys Rev B*, 2000, 61: R10575~R10578 [\[DOI\]](#)
- 5 Kaufman D, Berk Y, Dwir B, et al. Conductance quantization in V-groove quantum wires. *Phys Rev B*, 1999, 59: R10433 ~ R10436 [\[DOI\]](#)
- 6 Biasiol G, Kapon E. Mechanism of self-limiting epitaxial growth on nonplanar substrates. *Journal of Crystal Growth*, 1999, 201-202: 62 ~ 66 [\[DOI\]](#)
- 7 Wang X L, Ogura M, Matsuhata H, et al. Carrier capture efficiency of AlGaAs/GaAs quantum wires affected by composition nonuniformity of an AlGaAs barrier layer. *Appl Phys Lett*, 1995, 67: 804 ~ 806 [\[DOI\]](#)
- 8 Dwir B, Kaufman D, Berk Y, et al. Electron transport in AlGaAs/GaAs V-groove quantum wires. *Physica B*, 1999, 259-261: 1025 ~ 1027
- 9 Liu X Q, Lu W, Li Z F, et al. Spatial resolved luminescence investigation of AlGaAs/GaAs single quantum wire modified by selective implantation and annealing. *Appl Phys Lett*, 1999, 75(21): 3339 [\[DOI\]](#)
- 10 Kapon E, Hwang D W, Bhat R, et al. Stimulated emission in semiconductor quantum wire heterostructures. *Phys Rev Lett*, 1989, 63: 430 ~ 433 [\[DOI\]](#)
- 11 Vouilloz F, Oberli D Y, Dupertuis M A, et al. Polarization anisotropy and valence band mixing in semiconductor quantum wires. *Phys Rev Lett*, 1997, 78: 1580 ~ 1583 [\[DOI\]](#)
- 12 Goldni G, Rossi F, Molinari E, et al. Valence band spectroscopy in V-grooved uantum wires. *Appl Phys Lett*, 1996, 69(20): 2965 ~ 2967 [\[DOI\]](#)
- 13 夏建白, 黄 昆. 一维超晶格的子能带和光跃迁. *半导体学报*, 1987, 8: 563 ~ 573
- 14 Gammon D, Snow E S, Shanabrook B V, et al. Fine structure splitting in the optical spectra of single GaAs quantum dots. *Phys Rev Lett*, 1996, 76: 3005 ~ 3008 [\[DOI\]](#)
- 15 Vouilloz F, Oberli D Y, Dupertuis M A, et al. Effect of lateral confinement on valence-band mixing and polarization anisotropy in quantum wires. *Phys Rev B*, 1998, 57: 12378 ~ 12387 [\[DOI\]](#)
- 16 Grilli E, Guzzi M, Zamboni R. High-precision determination of the temperature dependence of the fundamental energy gap in gallium arsenide. *Phys Rev B*, 1992, 45: 1638 ~ 1644 [\[DOI\]](#)
- 17 Nojima S. Suppression of exciton-phonon scattering in quasi-one-dimensional systems. *Phys Rev B*, 1992, 46: 2302 ~ 2311 [\[DOI\]](#)
- 18 Maciel A C, Kim J, Ryan J F, et al. Electron states, magneto-transport and carrier dynamics in modulation-doped V-groove quantum wires. *Solid-State Electron*, 1998, 42: 1245 ~ 1249 [\[DOI\]](#)
- 19 Tsukernik A, Palevski A, Goldman V J, et al. Quantum magnetotransport in periodic V-grooved heterojunctions. *Phys Rev B*, 2001, 63: 153315-1~ 153315-4