

材料、结构及工艺

多层 InAs量子点的光致发光研究

孔令民¹, 蔡加法¹, 陈厦平¹, 朱会丽¹, 吴正云¹, 牛智川²

(1 厦门大学 物理系, 福建 厦门 361005; 2 中国科学院半导体研究所 超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

摘要: 采用 MBE设备生长了多层 InAs/GaAs量子点结构, 测量了其变温光致发光谱和时间分辨光致发光谱。结果表明多层量子点结构有利于减小发光峰的半高宽, 并且可以提高发光峰半高宽和发光寿命的温度稳定性。实验发现, 加 InGaAs盖层后, 量子点发光峰的半高宽进一步减小, 最小达到 23.6 meV, 并且发光峰出现红移。原因可能在于 InGaAs盖层减小了 InAs岛所受的应力, 阻止了 In组分的偏析, 提高了 InAs量子点尺寸分布的均匀性和质量, 导致载流子在不同量子点中的迁移效应减弱。

关键词: 多层 InAs量子点; 光致发光; 时间分辨谱

中图分类号: O472.3 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-5868(2005)06-0519-04

Photoluminescence of Multilayer InAs Quantum Dots

KONG Ling-min¹, CAI Jia-fa¹, CHEN Xia-ping¹, ZHU Hui-li¹, WU Zheng-yun¹, NIU Zhi-chuan²

(1 Physics Department, Xiamen University, Xiamen 361005, CHN; 2 National Laboratory for Superlattice and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, CHN)

Abstract: Multilayer InAs/GaAs quantum dots structures were grown by molecular-beam epitaxy (MBE). The steady-state and time-resolved photoluminescence of the samples were measured at various temperatures. Results showed that multilayer structures could not only narrow the photoluminescence FWHM (full width at the half maximum) but enhance the stability of the photoluminescence lifetime and FWHM. As for the quantum dots with InGaAs cap layer, the photoluminescent spectra became narrower (the narrowest FWHM was only 23.6 meV) and the photoluminescent wavelength became longer. The possible reason for the above phenomena was that the InGaAs cap layer could both release the strains in InAs islands and inhibit segregation of In components, resulting in the weaker migration among different quantum dots.

Key words: multilayer InAs quantum dots; photoluminescence; time-resolved spectra

1 引言

InAs/GaAs半导体量子点材料因其独特、优越的光电性质和应用价值, 近年来引起了人们的普遍重视^[1-5]。理论计算表明, 在量子点中, 由于载流子在三个方向的运动都受到限制, 束缚在其中的电子具有函数能态密度特性; 在实验上, 利用微区光致发光 (PL) 谱测量到的单个量子点发光峰的半高宽 (FWHM) 也只有 0.1 meV 左右^[5,6]。但 InAs 自组织

量子点的大小不均匀, 其尺寸按一定的高斯线型分布, 而通常测量到的是大量量子点发光信号的叠加, 这就造成了量子点具有一个较宽的发光峰, 其半高宽一般都大于 40 meV^[7,8]。光谱的半高宽直接反映了量子点尺寸分布的非均匀性, 因而实现量子点的形状、尺寸、密度、空间有序性的可控生长, 获得尺寸分布均匀、发光谱线窄的量子点, 成为量子点材料实用化的关键。研究发现, 多层生长的 InAs 自组织量子点上下层之间出现相互耦合与自对直作用, 量子点中的应力可以较充分地弛豫, 从而可以提高量子

收稿日期: 2005-03-15

点的质量和尺寸分布的均匀性^[9-12]。本文采用多层生长方法制备了 InAs 自组织量子点,通过变温光谱测量与分析,研究了 InAs 自组织量子点的光学特性。

2 样品结构与制备

本研究采用 VG 公司的 V80H MK IIMBE 系统生长了两组自组织 InAs 量子点样品。半绝缘 GaAs (100) 衬底经 580 °C 脱氧后,在 600 °C 下生长 500 nm 的 GaAs 缓冲层,随后温度降至 510 °C,生长 10 nm 的 GaAs 层,接着生长有源层,最后再覆盖 10 nm 的 GaAs 层。两组样品的区别在于有源层的不同:样品 A 为 3 个周期的 InAs/GaAs (2.5 ML/50 nm),而样品 B 为 3 个周期的 In_{0.2}Ga_{0.8}As/InAs/GaAs (2.5 ML/3 nm/50 nm),其中每生长一层量子点,都有 5 s 的停顿。整个生长过程由高能电子衍射 (RHEED) 进行监测。

光致发光谱和瞬态光致发光谱使用 Edinburgh 公司的 FL920 瞬态光荧光测试仪进行测试,探测器为基于时间相关单光子计数技术的 Hamamatsu R5509-72 PMT;激发光源为 635 nm 半导体脉冲激光器;用 APD CSW 204 闭环循环致冷系统控制样品温度,温度测量范围为 10 ~ 300 K。

3 结果与讨论

图 1 为两个样品在 10 K 时的光致发光谱。通过变激发光功率测量 (这里未示出),发现两个样品的 PL 峰值位置和线型随激发光功率增加都没有发生变化,说明它们是不同的尺寸量子点基态发光的叠加^[8],而不是量子点的激发态发光,样品 B 可由两个高斯线型拟合。样品 A 和 B 的发光主峰波长分别为 1155 nm (1.0736 eV) 和 1184 nm (1.0473 eV),半高宽分别为 29.1 meV 和 27.2 meV。这比通常生长的单层量子点发光峰的半高宽 40 meV 要小,说明采用多层生长方法确实可以使量子点的大小趋于一致^[5-8]。其原因在于多层生长时,下层 InAs 量子点应力场的分布会对紧接着生长的上一层产生影响,使得上层量子点有规律地与下层对齐,整个系统因此而成为更加紧密联系的耦合系统。且在多层生长时,每生长一层都有停顿,上下层之间的应力可以充分地弛豫,使量子点尺寸更加均匀。样品 B 比样品 A 发光谱的半高宽更小、发光波长更长,这可能

是由于样品 B 增加了 InGaAs 缓冲层的结果: InGaAs 的晶格常数更接近于 InAs,因此在 InAs 量子点上生长 InGaAs 缓冲层,可以减小量子点中来自 GaAs 盖层的应力,阻止 In 组分的偏析,从而可以影响其能级位置、提高其尺寸均匀性,使发光谱线更窄^[7,13]。另外,样品 B 在短波端出现发光强度较弱的 X 峰,它来源于少量所受应力较大的小量子点的基态发光,由于 X 峰强度很弱且与主发光峰分得较开,它对主发光峰影响不大。

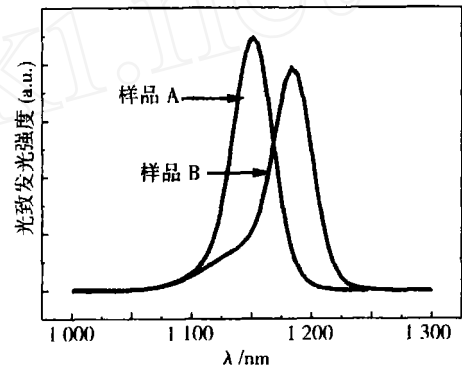


图 1 样品 A 和样品 B 在 10 K 时的光致发光谱

两个样品的 PL 谱具有不同的温度特性,分别如图 2、3 所示。对于样品 A,在 10 ~ 40 K、100 ~ 130 K 两个温度区,发光强度具有随温度升高而增强的反常现象,但在两个温度区中的增强机制不同:对于前一个温度区,若考虑到 InAs 带边红移的影响,高能端与低能端发光增强的速度并没有明显的差别。这反映了在此过程中,通过浸润层迁移到量子点中的载流子数目增加^[14];而对于后一个温度区,PL 谱具有不对称的变化,即随温度增加低能端发光强度增大的速度更大,这可能是因为在温度区,量子点内发生多声子弛豫过程,更多的载流子从势垒层弛豫到量子点发光,载流子在不同尺寸和不同的能态的量子点之间,从高能态到低能态迁移速率的增大所导致的。从 40 K 到 100 K 发光强度逐渐降低,原因在于高能态载流子的热发射数目增加,导致辐射复合减少。另外,高能端的发光强度比低能端的发光强度下降快是载流子从高能态向低能态的迁移所致。当温度升高到 130 K 以后,热发射过程开始起作用,量子点的发光随温度升高逐渐变弱。与样品 A 不同,样品 B 的量子点发光强度随温度上升而单调减小。这是由于加了 InGaAs 盖层的 InAs 量子点的尺寸均匀性得到提高,而量子点的尺寸均匀性提高会引起载流子在不同量子点间的迁移效应减弱,

这也是导致 X峰与主峰分开的一个原因。

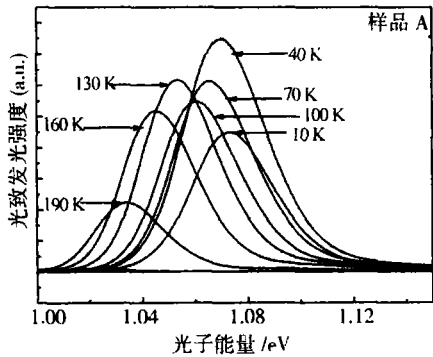


图 2 样品 A 在不同温度下的 PL 谱

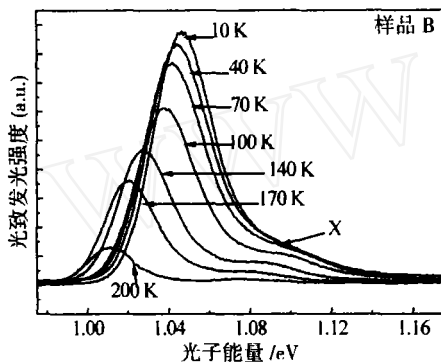


图 3 样品 B 在不同温度下的 PL 谱

图 4 为两个样品发光峰值能量随温度变化情况,其中实线给出了 InAs 体材料带隙随温度的变化趋势。从图中可以看出,随着温度的升高,样品 B 发光峰值位置的红移与 InAs 体材料带隙的红移基本一致(二者差值仅为 3 meV),它主要反映了量子点的本征特性^[15]。而在相同的温度区间内,样品 A 发光峰位红移与 InAs 体材料带隙红移的差值为 10 meV,这说明载流子在不同量子点之间的迁移过程对样品 A 的发光有着重要的影响。

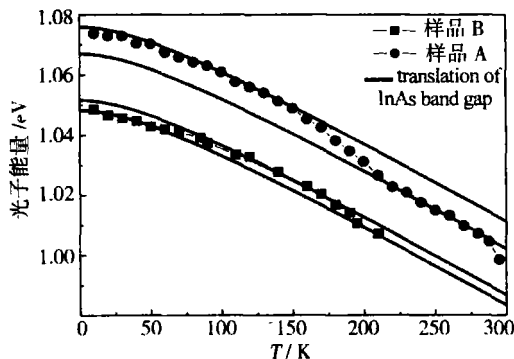


图 4 样品的发光峰值能量与温度的变化关系

图 5 为两个样品的半高宽与温度的变化关系。

样品 A 的发光峰首先变窄,当温度高于 220 K 时,发光峰又开始变宽,其可能机理在于^[16]:由于量子点载流子的运动在三个方向都受到限制,而量子点的尺寸又比较小,因此局域在量子点上的激子波函数扩展到量子点外的几率较大,与邻近量子点中的激子波函数有一定的交叠。典型的量子点的底部平均尺寸和相邻量子点间的距离都约在 20 nm 左右,对于这样的间距,相邻量子点之间激子波函数应有较大的交叠。即使量子点之间的距离更大,它们的激子波函数可以通过扩展在整个浸润层中的浸润层激子波函数相互贯穿,量子点中的载流子可发生相互扩散和转移。这种波函数的交叠和扩展,实际上增加了参与发光的态密度,有助于载流子的弛豫过程,也有助于解除声子瓶颈效应,使总的发光强度加强。当温度升高时,载流子的热运动和电子声子相互作用使不同量子点之间载流子相互转移的几率增加,促使高能级的载流子向低能级转移,从而使得光谱的线宽变窄。当温度进一步增加时,由于载流子的热布居,光谱半宽随之增加^[17]。与样品 A 不同,样品 B 的光谱半高宽随温度升高(小于 50 K)先稍有增大^[16],再逐渐减小,最小只有 23.6 meV,其在整个测量温区内的变化只有约 4 meV。总体来说,两个样品的半高宽都较小,并且随着温度的升高变化都不大,这进一步验证了多层生长可以使量子点的尺寸均匀性得到改善。与样品 A 相比,样品 B 的尺寸均匀性得到进一步改善,载流子在不同量子点中的迁移效应不明显^[18]。

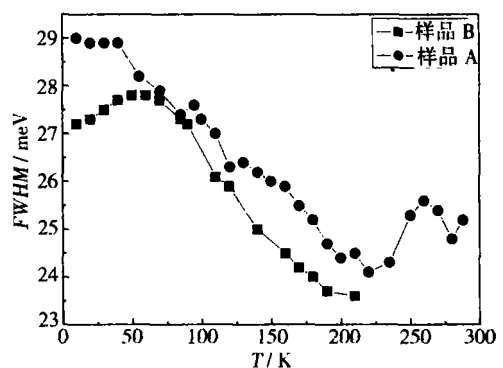


图 5 两个样品 PL 谱的半高宽与温度的变化关系

两个样品的光致发光时间分辨谱表明(这里未示出),在不同的延迟时间内,发光峰的峰值位置没有移动,并且发光峰的高能端与低能端具有相似的衰减趋势,这说明没有出现能带填充效应和激发态发光,两个量子点样品具有相同的发光衰退机理。

通过对样品 A 及样品 B 的时间分辨谱进行拟合,发现两个样品的发光均符合单指数衰减规律。图 6 为样品在 PL 发光峰值处的发光寿命随温度的变化关系。从图中可以看出,从 10 K 到 180 K 左右,两个样品的发光寿命均随着温度的升高而增大。影响量子点发光寿命变化的因素主要可以分为两种:载流子产生和载流子复合,其中载流子从外界迁移到量子点中使量子点的发光寿命增大;而热发射、非辐射复合等过程使其寿命变短。理论上,量子点的辐射复合寿命不随温度变化,寿命变短主要由于热发射引起的,而热发射与热激活能有关。因此对于这两个样品,直到 180 K 左右热发射才起主要作用,这说明多层生长的量子点构成了一个联系紧密耦合系统,在这种系统中,应力得到充分弛豫,缺陷位错都很少,受热发射的影响较小。从图中还可以看出,样品 B 的发光寿命比样品 A 的小,并且随温度变化也很小。由于温度高于 210 K,时间分辨谱测量系统的分辨率不足以测量到样品 B 的发光寿命,但我们估计,其发光寿命随温度升高的变化应该不大^[19],这说明 InGaAs 盖层的引入一方面加快了载流子从 GaAs 势垒到量子点中的弛豫过程,另一方面提高了量子点尺寸的均匀性,使载流子在不同量子点之间的迁移效应减弱,结果使样品的发光具有更好的温度稳定性(参见图 3~5)。

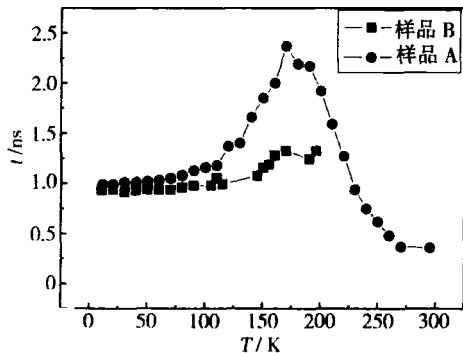


图 6 不同温度下样品的发光寿命

4 结论

我们用 MBE 方法生长了两组高质量的多层 InAs 量子点样品 A 和 B,通过研究其变温光致发光特性,发现多层生长的方法可以减小量子点材料发光峰的半高宽,提高其温度稳定性。实验证实,具有 InGaAs 盖层的多层生长量子点具有更长的发光波长和更窄的发光谱线,这可能是由于载流子在不同量子点间的迁移效应减弱导致的。以上结果将有助

于进一步研究如何获得可应用于光电通信的高质量长波长发光的 InAs 量子点材料^[20]。

参考文献:

- [1] Evtikhiev V P, Tokranov V E, Kryzhanovskii A K, et al Growth of InAs quantum dots on vicinal GaAs (001) surfaces misoriented in the [010] direction [J]. Semiconductors, 1998, 32(7): 765-769.
- [2] Ustinov V M. Quantum dot structure: fabrication technology and control of parameters [J]. Semiconductors, 2004, 38(8): 923-930.
- [3] Hsieh T P, Chiu P C, Liu Y C, et al Selective growth of InAs quantum dots on patterned GaAs [J]. J. Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, 2005, 23(1): 262-266.
- [4] 王亚东,黄靖云,叶志镇,等. 半导体量子点的器件应用 [J]. 半导体光电, 2000, 21(5): 310-313.
- [5] 赵凤璠,张春玲,王占国,等. 半导体量子点及应用 (I) [J]. 物理, 2004, (4): 249-256.
- [6] Empedocles S A, Norris D J, Bawendi M G Photoluminescence spectroscopy of single CdSe nanocrystallite quantum dots [J]. Phys Rev Lett, 1996, 77(18): 3 873.
- [7] 王晓东,刘会赞,牛智川,等. 不同组分 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}$ ($0 < x < 0.3$) 覆盖层对自组织 InAs 量子点的影响 [J]. 物理学报, 2000, 49(11): 2 230-2 234.
- [8] Hjiri M, Hassen F, Maaref H. Optical characterisation of self organized InAs/GaAs quantum dots grown by MBE [J]. Materials Science and Engineering B, 2000, 74: 253-258.
- [9] 李树玮,小池一步,矢野满明. 垂直堆垛 InAs 量子点材料的分子束外延生长 [J]. 稀有金属, 2004, 28(1): 207-209.
- [10] 封松林. In(Ga)As 自组织量子点激光器获重大突破 [J]. 高技术通讯, 2000, (1): 112.
- [11] 朱天伟,徐波,何军,等. InAs/GaAs 柱形岛的制备及特性研究 [J]. 物理学报, 2004, 53(1): 301-305.
- [12] 朱东海,范缙文,梁基本,等. MBE 自组织生长多层竖直自对准 InAs 量子点结构的研究 [J]. 发光学报, 1997, 18: 228-231.
- [13] Nishi K, Saito H, Sugou S, et al A narrow photoluminescence linewidth of 21 meV at 1.35 μm from strain-reduced InAs quantum dots covered by $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ grown on GaAs substrates [J]. Appl Phys Lett, 1999, 74(8): 1 111.

(下转第 526 页)

4 结论

本文采用几何光学方法,通过理论分析和数值模拟,研究了在半导体激光阵列和光纤阵列耦合的基础上,如何借助于一个简单的微透镜和一根球形端面光纤同时获得高功率和高亮度的激光输出。结果表明,选择一个具有合适参数的微透镜,通过精确控制微透镜和光纤束之间的距离以及球形端面光纤和微透镜之间的距离,就可以将直径为 1.3 mm 的光束转换为直径为 400 μm 的光束,功率损失只有不到 10%,亮度则提高了近 9 倍。相对于德国雷蒙公司采用的光束整形耦合技术,这种耦合技术同样具有较高耦合效率,但实现起来相对简单,组装调试也更方便。目前,我们正在进行相关的实验测试工作,并试图将其组装成一个整体模块。

参考文献:

- [1] Heinenann S, Leininger L. Fiber coupled diode lasers and beam-shaped high-power stacks [J]. Proc SPIE, 1998, 3267: 116-124.
- [2] Dorsch F, Hennig P, Nickel M. High-brightness fiber-coupled diode laser module [J]. Proc SPIE, 1998,

3285: 192-198.

- [3] 石 鹏, 李小莉, 张贵芬, 等. 大功率激光二极管的薄片棱镜堆光束整形和光纤耦合输出 [J]. 光学学报, 2000, 20 (11): 1544-1547.
- [4] 武德勇, 高松信, 严地勇, 等. 高功率阵列半导体激光器光纤耦合设计 [J]. 激光杂志, 2002, 23 (5): 19-20.
- [5] 薄报学, 曲 轶, 高 欣, 等. 高功率阵列半导体激光器的光纤耦合输出 [J]. 光电子·激光, 2001, 12 (5): 468-470.
- [6] Wang X W, Xiao J W, Ma X Y, et al. Fiber coupling of laser diode bar to multimode fiber array [J]. Chinese J. Semiconductors, 2002, 23 (5): 464-467.
- [7] 吴金辉, 李丽娜, 王立军. 三种不同端面光纤阵列和半导体激光阵列耦合的(数值)模拟研究 [J]. 发光学报, 2005, 26 (1): 115-119.

作者简介:

吴金辉(1975 -),男,黑龙江人,长春光学精密机械与物理研究所博士后,吉林大学物理学院讲师。主要从事高功率半导体激光阵列光纤耦合模块和量子光学中原子相干效应的理论和实验研究工作。

E-mail: wujinhui0431@sina.com

(上接第 522 页)

- [14] 孔令民, 蔡加法, 陈主荣, 等. 自组织生长单层 InAs 量子点结构中浸润层与量子点发光的时间分辨谱研究 [J]. 量子电子学报, 2003, 20 (2): 208.
- [15] Heitz R, Mukhametzhano I, Madhukar A, et al. Temperature dependent optical properties of self-organized InAs/GaAs quantum dots [J]. J. Electron. Materials, 1999, 28 (5): 520.
- [16] Xu Z Y, Lu Z D, Yang X P, et al. Carrier relaxation and thermal activation of localized excitons in self-organized InAs multilayers grown on GaAs substrates [J]. Phys Rev B, 1996, 54: 11528.
- [17] Hyun B R, Furuya M, Takemoto K, et al. Homogeneous line broadening mechanism of quantum dots [J]. J. Luminescence, 2000, 87-89: 302-304.
- [18] Song J D, Park Y M, Shin J C, et al. Influence of arsenic during indium deposition on the formation of the wetting layers of InAs quantum dots grown by migration

enhanced epitaxy [J]. J. Appl Phys, 2004, 96 (8): 4122-4125.

- [19] Mukai K, Ohtsuka N, Sugawara M, et al. High photoluminescence efficiency of InGaAs/GaAs quantum dots self-formed by atomic layer epitaxy technique [J]. Appl Phys Lett, 1997, 70 (18): 2416.
- [20] Ustinova V M, Zhukova A E, Kovsha A R, et al. Long-wavelength emission from self-organized InAs quantum dots on GaAs substrates [J]. Microelectronics Journal, 2000, 31: 1-7.

作者简介:

孔令民(1976 -),男,山东莘县人,1998年7月毕业于山东大学物理系,现为凝聚态物理专业博士生。主要从事低维半导体材料的光学性质研究。

E-mail: littlebearkong@vip.sina.com