材料、结构及工艺

InGaAs/InAlAs 盖帽层对 InAs 自组装量 子点发光性质的影响

孔令民¹,姚建明¹,吴正云² (1. 浙江海洋学院物理系,浙江舟山 316000; 2. 厦门大学物理系,福建厦门 361005)

摘要:采用变温及时间分辨光致发光谱研究了 MBE 设备生长的具有不同盖帽层的 InAs 量子点样品。发现引入 InG aAs 盖帽层可以使 InAs 量子点发光的半高宽减小,且向长波长移动。 InG aA s/InAlAs 联合盖帽层可以进一步改善 InAs 量子点发光性能,使得室温发光波长超过 1.3 µm;在 10~300 K 温度范围内,发光峰值能量及半高宽随温度的变化都较小。随温度升高, InAs 量子点的发光寿命首先增大,当温度升高到临界温度 Tc 后,发光寿命逐渐减小。但覆盖不同盖帽 层的 InAs 量子点样品,其发光寿命具有不同的温度关系,联合盖帽层样品具有较大的 Tc 及发光 寿命。根据应力及载流子迁移模型 对以上实验结果进行了分析。

关键词: 盖帽层;InAs量子点;时间分辨谱

中图分类号: TN 304.32 文献标识码: A 文章编号: 1001-5868(2008)03-0349-04

Photoluminescence Characteristics of InAs Self-assembled Quantum Dots Capped with InGaAs and InAlAs Layers

KONG Ling-min¹, YAO Jian-ming¹, WU Zheng-yun²

(1. Department of Physics, Zhejiang Ocean University, Zhoushan 316000, CHN;

2. Department of Physics Xiamen University, Xiamen 361005, CHN)

Abstract: InAs quantum dots (QDs) with different cap layers were fabricated by molecule beam epitaxy (MBE) system. Temperature-dependent and time-resolved photoluminescence (PL) measurements were employed to study PL properties of InAs QDs. InAs QDs with InGaAs cap layer show an obvious diminution of PL emission full width at half maximum (FWHM) and a redshift of PL peak. InGaAs and InAlAs combination cap layer (CCL) could further improve PL properties of InAs QDs and lead to above 1.3 μ m emission at room temperature. The smallest FWHM of InAs with CCL is only 24 meV around 240 K and the variations of PL FWHM and peak energies are much smaller than those of the others in the temperature range of 10~300 K. As the temperature increases, PL lifetime rises gradually and reaches a maximum value, the critical temperature Tc and then drops at higher temperature. However, the detailed lifetimetemperature relations for the samples differ from each other. InAs QDs with CCL have the largest Tc and lifetime. A detail analysis is given to explain the experimental results according to the mechanism of stress relaxation and carriers migration.

Key words: cap layer; InAs quantum dots; time-resolved photoluminescence

收稿日期:2007-08-13. 基金项目:浙江省舟山市科技项目(06110);浙江海洋学院科 研项目(X06LY01);浙江海洋学院人才引进项目 (211050041).

1 引言

自组装量子点结构具有潜在而诱人的器件应用 前景。然而要实现理论预言的水平,自组装量子点 仍然面临着诸多挑战。对于激光器来说,为避免热 布局效应,降低阈值,其基态和第一激发态的能级间 距至少大于 K_B T, 并且谱线半高宽要小, 这就要求 量子点的尺度必须在一定范围内,并且形状、尺寸分 布要均匀。为了提高量子点的均匀性和进一步研究 量子点的物理性质,人们已经采取多种方法制备量 子点^[1~7]。研究发现,在生长 GaAs 盖帽层之前,在 InAs 量子点上生长 InGaAs 以及 InAlAs 应力缓冲 层有助于增大量子点的发光波长,并且 InAlAs 可 以增强载流子的量子限制,提高发光效率。但对其 变温瞬态光学特性研究并不多。为了进一步提高长 波长 InAs/GaAs 量子点的物理性能, 研究 InGaAs 和 InAlAs 盖帽层对 InAs/GaAs 量子点结构和瞬 态发光性质的影响显得尤为重要。本文制备了不同 盖帽层的 InAs 量子点样品, 通过变温及时间分辨 谱的测量与分析,研究了 InAs 自组织量子点的光 学特性。

2 实验

量子点生长所用设备为 VG 公司的 V80H MK II MBE 系统。半绝缘 GaAs(100)衬底经 580 [℃]脱 氧后,在 600 [℃]下生长 500 nm 的 GaAs 缓冲层,随 后温度降至 510 [℃],生长 20 nm 的 GaAs 缓冲层,随 后温度降至 510 [℃],生长 20 nm 的 GaAs,接着生长 2.5 ML 的 InAs 层,再生长盖帽层,最后生长 60 nm 的 GaAs 层。3 组样品的区别在于盖帽层不同:样 品 A 为 InAlAs 和 InAsAs 联合盖帽层,样品 B 只 有 InGaAs 盖帽层,而样品 C 直接覆盖 GaAs 层。 图 1 为样品的结构示意图。



图 1 样品的结构示意图

3 结果与讨论

图 2 为 3 组样品在 10 K 时的光致发光谱。样 品 A、B 和 C 的发光峰值能量分别为 1.003 eV、 1.052 eV和 1.062 eV。显然,增加覆盖层可以使量 子点的发光峰红移。样品 B 和 C 的 PL 半高宽分别 为 35 meV 和 37 meV。半高宽较小,说明样品质量 较好,有较好的尺寸均匀性。样品 A 的半高宽只有 26 meV,并且在 300 K 时也有较强的发光(如图 2 插图所示),发光波长超过 1.3 μm,这说明联合盖帽 层可以进一步改善量子点的发光性能。



图 2 3 组样品在 10 K 时的光致发光谱,其中插图为样品 A 在 300 K 时的 PL 谱

我们知道,应力作用对量子点发光谱的峰位和 半高宽影响最为突出。而盖帽层的结构决定了它对 量子点的应力作用。Satio等^[8]的研究结果表明:通 过改变盖帽层可以使量子点发光峰值能量减小 287 meV,其中无盖帽层的量子点材料发光波长达 1.53 $\mu_{\rm m}$ 。但无盖帽层的样品发光强度很小。与仅仅引 入 InGaAs 盖帽层相比,选择合适的 InGaAs/ InAlAs 联合盖帽层,可以增加应力的释放途径,同 时可以很好地限制载流子在量子点内进行复合发 光。InGaAs的晶格常数更接近于 InAs, 因此在 InAs 量子点上覆盖 InGaAs 缓冲层, 一方面可以减 小量子点中来自 GaAs 盖层的应力从而使量子点的 高度增加。值得注意的是高度的尺寸分布范围并没 有增大,量子点的高度限制变小,因此高度的弥散对 量子点能级展宽的影响变小,这使得量子点尺寸不 均匀性对发光峰的半高宽影响减弱。另一方面, InGaAs 缓冲层可以阻止 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^[3~5,7]。对于样品 A,覆盖联合盖帽层可以增强上 述作用,使得量子点 PL 谱的半高宽进一步减小。 GaAs 衬底上生长应变的 InAs 量子点材料要 受到两种应力释放机制,即应变能积聚后的位错产 生和三维岛形成的制约,因而,对生长条件要求比较 苛刻,必须保持 InAs 的淀积量在一定范围内。 InGaAs和InAlAs联合盖帽层的引入,增加了应力 的释放途径,这就增大了 InAs 的淀积量范围^[7]。 在生长 InAs量子点盖帽层的过程中,InGaAs盖层 中 In 原子和 InAlAs盖层中 Al 原子的存在有利于 阻止 In 原子和 Ga 原子在 InAs量子点与 GaAs势 垒层之间的相互扩散,较好地保持了 InAs量子点 尺寸分布的均匀性^[1,3]。从而使量子点中应力减 小,发光产生强烈红移。需要指出的是,加了 InAsAl盖帽层,会使量子点的限制势增大,导致量 子点的基态能级有所升高,发光蓝移,但与应力减小 引起的红移相比,这种蓝移效果不明显。

变温 PL 谱是研究一种研究载流子弛豫的重要 手段。半导体中带隙 *E*_s 随温度的变化关系一般可 以用 Varishini 关系来描述:

 $E_{g} = E_{g0} - \alpha T^{2}/(T+\beta)$ (1) 式中, α 、 β 是与具体材料有关的拟合参数, 对 InAs 材料而言, $\alpha = 2.76 \times 10^{-4}$, $\beta = 83$ 。图 3 为 3 组样品 PL 峰值能量与温度的变化关系, 其中, 样品 C 的室 温发光波长超过 1.3 μ m。



图 3 3 组样品 PL 峰值能量及半高宽与温度的变化关系, 其中(a)给出了 InAs 禁带宽度平移后随温度的变化 (实线), 以及 1.3^μm 分界线(点线)

在温度低于 50 K 时, 样品 A、B 和 C 的发光峰 位基本没有变化,这是局域化效应的结果^[9]。 50 ~ 120 K, 样品发光峰值能量与 InAs 带隙随温度变化 基本一致; 当温度高于 120 K, 发光峰值的减小速率 大于 InAs 禁带宽度的减小速率。这代表载流子在 不同量子点间迁移, 其中从能级较高的小量子点向 能级位置较低的大量子点的迁移几率更大, 从而引 起发光峰的快速红移^[10]。但总体来说, 样品 C 的变 化量最大, 而样品 A 的变化量最小, 并且样品 A 发 光峰的半高宽比其它两个样品的小, 且随温度的变 化也较小。这进一步说明联合盖帽层的引入在一定 程度上阻止了载流子在不同量子点之间的迁移, 改 善了量子点样品的温度稳定性^[11]。

为了进一步研究盖帽层对 InAs 量子点载流子 弛豫机制的影响,我们分别测量了3组样品在不同 温度下的发光寿命。关于时间分辨谱测量详见我们 以前的研究结果^[5,12~14]。如图4所示,这3组样品 的发光寿命(で)有个共同点:首先,随温度升高,发光 寿命先增大,当温度升高到临界温度 Tc后,发光寿 命逐渐减小。我们知道,量子点的本征复合寿命不 随温度改变,但是仪器探测到的是大量量子点的综 合的发光寿命随着温度的增加,激子离化[15] 以及载 流子在不同量子点之间贯穿,增加了发光渠道,导致 发光寿命增加¹²,实际上这类似于二维量子阱的温 度特性。随着温度进一步升高,热发射起主要作用, 导致其发光寿命减小^[13,16]。显然,样品A的Tc最 大, 而样品 C 的 $T_{\rm C}$ 最小。这说明盖帽层增强了对载 流子的限制作用,减弱了非辐射跃迁以及带内跃迁 过程的影响。样品 A 的发光寿命最大,在 160 K 左 右,其发光寿命达到 10 ns 左右,这是因为 InAlAs 具有较高的势垒,载流子通过 InAlAs 层激发到浸 润层后的再俘获过程使发光寿命增加。这说明联合 限制层增强了对载流子的限制作用,可以有效减弱 非辐射复合过程的影响,提高量子点的发光效率,在 室温下样品 A 仍然具有较强的发光强度。



4 结论

本文研究了具有不同盖帽层的 InAs 自组织量 子点的光致发光特性,发现联合盖帽层结构可以有 效缓冲量子点中的应力,使 InAs 量子点的发光向 长波移动(室温~1.3 µm)且半高宽减小。变温 PL 研究发现,联合盖帽层可以在一定程度上阻止载流 子在不同量子点之间的迁移,改善量子点的温度稳 定性。同时,联合盖帽层结构可以提高载流子的限 制势垒,增大发光效率。

参考文献:

- Marzin J Y, Bastard G. Calculation of the energy levels in InAs/GaAs quantum dots [J]. Solid State Commun., 1994, 92: 437.
- [2] Huffaker D L, Baklenov O, Graham L A, et al. Quantum dot vertical-cavity surface-emitting laser with a dielectric aperture [J]. Appl. Phys. Lett., 1997, 70: 2 356-2 358.
- [3] 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 In_{0.2}Ga_{0.8}As grown on GaAs substrates[J]. Appl. Phys. Lett., 1999, 74: 1111.
- [4] Ustinov V M. Quantum dot structures: fabrication technology and control of parameters [J]. Semicondutors, 2004, 38(8): 923-930.
- [5] 孔令民,姚建明,吴正云.InGaAs/GaAs量子阱中自组 装 InAs量子点的光学性质[J].半导体光电,2007,28 (2):198-201.
- [6] Jocye P B, Krzyzewski T J, Bell G R, et al. Optimizing the growth of 1. 3^µm InAs/GaAs quantum dots[J]. Phys. Rev. B 2001, 64: 235317.
- [7] Liu H Y, Hopkinson M, Harrison C N, et al. Optimizing the growth of 1.3 mm InAs/InGaAs dotsin-a-well structure [J]. J. Appl. Phys., 2003, 93: 2 931.
- [8] Saito H, Nishi K, Sugou S. Influence of capping on the optical properties of InGaAs/GaAs surface quantum dots with 1. 5μm emission[J]. Appl. Phys. Lett., 1998, 73: 2742-2744.
- [9] Zhang Z H, Cheng K Y. Temperature stabilized 1.55 μm photoluminescence in InAs quantum dots grown on InAlGaAs/ InP[J]. J. Vacuum Science and Technol.

B, 2004, 22: 1 508-1 511.

- [10] Sanguinetti S, Henini M, Alessi M G, et al. Carrier thermal escape and retrapping in self-assembled quantum dots[J]. Phys. Rev. B, 1999, 60(11): 8 276-8 283.
- [11] Song J D, Park Y, 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): 4 122-4 125.
- [12] 孔令民, 蔡加法, 陈夏平, 等. 多层 InAs 量子点的光致 发光研究[J]. 半导体光电, 2005, 26(6): 519-522.
- [13] Kong L M, Wu Z Y, Feng Z C, et al. Photoluminescence characteristics of InAs selfassembled quantum dots in InGaAs/GaAs quantum well[J]. J. Appl. Phys., 2007, 101(1): 126101.
- [14] Kong L M, Cai J F, Wu Z Y, et al. Time-resolved photoluminescence spectra of self-assembled InAs/ GaAs quantum dots[J]. Thin Solid Films, 2006, 498 (1-2): 188-192.
- [15] Lomascolo M, Anni M, Giorgi M De. Time-resolved magnetospectroscopy of In_xGa_{1-x} As/ GaAs V-shaped quantum wires[J]. Phys. Rev. B, 2000, 61 (19): 12 658-12661.
- [16] Miska P, Even J, Paranthoen C, et al. Vertical electronic coupling between InAs/InP quantum-dot layers emitting in the near-infrared range[J]. Appl. Phys. Lett., 2005, 86: 111905.

作者简介:

孔令民(1976-), 男, 山东人, 毕业于厦门大学 凝聚态物理专业, 获博士学位, 主要从事低维半导体 材料的光学性质研究。

E-mail: konglm0592 @yahoo.com

欢迎向 《半导体光电》 投稿