

亚单层 InGaAs 量子点-量子阱异质结构的时间分辨光致发光谱*

徐章程^{1,2)†} 贾国治¹⁾ 孙 亮¹⁾ 姚江宏¹⁾ 许京军¹⁾ J. M. Hvam²⁾ 王占国^{1,3)}

¹⁾ 弱光非线性光子学材料先进技术及制备教育部重点实验室,
南开大学物理科学学院和泰达应用物理学院,天津 300457)

²⁾ 丹麦技术大学通讯、光学和材料研究中心, Lyngby, DK-2800, 丹麦)

³⁾ 中国科学院半导体研究所半导体材料科学重点实验室,北京 100083)

(2005 年 2 月 2 日收到, 2005 年 3 月 14 日收到修改稿)

测定了亚单层 InGaAs/GaAs 量子点-量子阱异质结构在 5K 下的时间分辨光致发光谱. 亚单层量子点的辐射寿命在 500 ps 至 800 ps 之间, 随量子点尺寸的增大而增大, 与量子点中激子的较小的横向限制能以及激子从小量子点向大量子点的隧穿转移有关. 光致发光上升时间强烈依赖于激发强度密度. 在弱激发强度密度下, 上升时间为 35 ps, 纵光学声子发射为主要的载流子俘获机理. 在强激发强度密度下, 上升时间随激发强度密度的增加而减小, 俄歇过程为主要的载流子俘获机理. 该结果对理解亚单层量子点器件的工作特性非常有用.

关键词: 亚单层, 量子点-量子阱, 时间分辨光致发光谱

PACC: 7320D, 7865P, 7855E, 7360F

1. 引 言

近年来, 自组装半导体量子点的制备和应用备受人们关注. 这主要是由于量子点的 δ 函数状的能态密度会改变传统半导体器件, 如用于光纤通讯的激光器和用于环境检测和遥感的红外探测器等的特性^[1,2]. 同量子阱激光器相比, 量子点激光器具有阈值电流低和特征温度高等特性. 和量子阱探测器相比, 量子点探测器具有能探测垂直于异质结平面的入射光的功能.

生长自组装半导体量子点的方法主要有两种, 一种是传统的 S-K 生长模式, 被广泛应用于晶格失配材料, 例如在 GaAs 表面上生长 InAs 量子点. 在生长的初期是逐层生长的, 当膜厚刚超过临界厚度时, 无缺陷的 3 维岛会自发地形成在表面上. 另一种方法是亚单层 (Sub-monolayer, SML) 沉积法^[3]. 在该方法中, 以生长 InGaAs/GaAs 量子点为例, 首先在 GaAs 表面上生长 0.5 个单层的 InAs, 这时表面被高度为

一个单层的二维 InAs 岛所覆盖, 接着生长 2.5 个单层的 GaAs 以平滑表面. 然后重复该过程数次, 形成 InGaAs 量子点结构. 用亚单层沉积法生长的 InGaAs 量子点已经被用于室温发射波长为 940 nm 的高功率激光器^[3-5]. 2003 年, Xu 等发现亚单层 InGaAs 量子点结构其实是一个量子点-量子阱异质结构, 即 In 成分较高的 InGaAs 纳米点镶嵌在 In 成分较低的 InGaAs 量子阱中^[6,7]. 2004 年, Xu 等研制出室温发射波长为 965nm 的亚单层 InGaAs 量子点激光器, 该激光器具有高增益, 窄增益谱和零线宽增强因子等特性^[8].

量子点体系的载流子动力学研究对于理解量子点器件的工作特性具有十分重要的意义. 低温时间分辨光致发光技术可以用于研究量子点体系中载流子的俘获、弛豫和辐射寿命等. 对 S-K InGaAs 量子点, 人们已经做了大量工作^[9,10], 但对于亚单层 InGaAs 量子点, 尚未见报道. 本文用低温时间分辨光谱研究亚单层 InGaAs 量子点-量子阱异质结构中的载流子动力学.

* 国家自然科学基金 (批准号: 60444010, 60476042), 丹麦国家技术科学委 (STVF) 和南开大学人事处科研启动经费资助的课题.

† E-mail: zcxu@nankai.edu.cn

2. 实 验

亚单层 InGaAs/GaAs 量子点是用固体源分子束外延方法在半绝缘 GaAs(100)衬底上生长的. 脱氧化膜后, 先后在衬底温度为 600℃ 时生长了 500nm 的 GaAs 缓冲层, 20nm 的 AlAs, 和 82nm 的 GaAs. 再将衬底温度降至 480℃, 交替生长 0.5 个单层 InAs 和 2.5 个单层 GaAs 10 次以形成亚单层量子点层, 并且生长 2nm GaAs 覆盖层. 然后将衬底温度升至 600℃, 生长了 20nm 的 AlAs 和 106nm 的 GaAs 的盖帽层. 关于该样品的连续光激发光致发光谱, 参看文献 [6, 7].

时间分辨光致发光是在样品温度为 5K 下进行的. 从钛-蓝宝石飞秒激光器出射的波长为 800nm、脉冲宽度为 120fs 的脉冲光在 GaAs 势垒上产生载流子(电子-空穴对)载流子被亚单层量子点-量子阱俘获, 并在其中复合发光. 用棱镜收集的光致发光信号经单色器分光后被时间分辨率为 2.5ps 的条纹相机同步检测. 样品的激发光斑的直径大约为 50 μm .

3. 结果与讨论

3.1. 辐射寿命

时间分辨光致发光谱可以很好地说明载流子在能级上分布的时间演变. 图 1 给出了在 224 W/cm^2 的激发强度密度下, 在激光脉冲后不同延迟时间的光致发光谱. 可以清楚地看出量子阱峰在 208 ps 时为整个光谱的主要成分, 但衰减非常快, 量子点峰能持续至 1622 ps. 在 GaAs 势垒中产生的电子-空穴对(或激子)首先被量子阱直接俘获, 再在量子阱中弛豫, 最后被量子点俘获. 也可能是, 电子-空穴对(或激子)直接被量子点俘获. 如果载流子的密度高于量子点的密度, 多余的电子-空穴对(或激子)将在量子阱中复合, 导致量子阱峰的出现.

量子点中激子的寿命可以通过测定长延迟时间内的光致发光瞬态谱来获得. 在长延迟时间内, 载流子从高能态向低能态的再填充可以忽略. 图 2 给出了亚单层 InGaAs 量子点态的光致发光瞬态谱, 相应的激发强度密度为 45 W/cm^2 , 检测能量为 1.25 eV. 光致发光的衰减可以用一单指数函数进行拟合. 我

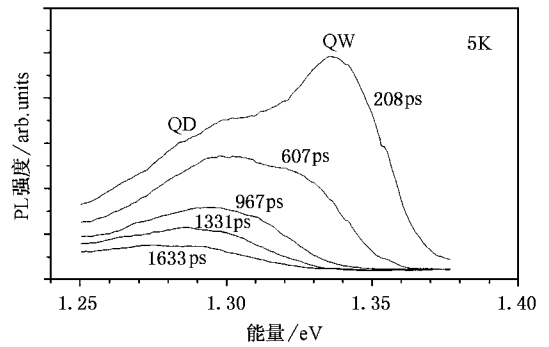


图 1 亚单层 InGaAs/GaAs 量子点-量子阱结构的时间分辨光致发光谱, 激发强度密度为 224 W/cm^2

们发现衰减时间为 768 ps, 几乎不依赖于激发强度密度. 长衰减时间是高质量半导体材料的特征. 样品中量子阱态的所测衰减时间为 309 ps, 如图 3 所示, 与文献中 InGaAs/GaAs 量子阱的结果接近. 图 4 给出了衰减时间和量子点发射能之间的关系曲线. 随着量子点跃迁能量的减小(随着量子点尺寸的增大)衰减时间也随之增大. 量子点中激子寿命的差别应归因于由不同量子点形貌引起的电子-空穴波函数交叠的变化^[10], 振子强度的增加(寿命的减小)与限制效应的减小相关联^[11]. 在 InGaAs 亚单层量子点-量子阱结构中, 量子点镶嵌在量子阱中^[6, 7], 量子点的横向势垒是量子阱. 由文献 [6] 的图 1 中量子点峰值 1.26 eV 和量子阱峰值 1.326 eV 可以得出与峰值对应的量子点中激子的横向限制能约为 0.066 eV, 比通常的 S-K InAs/GaAs 量子点中激子的横向限制能(约为 0.5 eV)要小得多. 而且, 发射能较高(大于 1.26 eV)的小量子点中激子的限制能更小, 波函数会穿透至势垒中, 使得激子的寿命减小. 另外, 亚单层量子点的面密度大, 点之间的间距只有 10 nm 左右^[7], 所以, 激子有可能从发射能较高的小量子点在声子辅助下经横向势垒隧穿至发射能较低的大量子点, 导致大量子点的光致发光寿命较长.

3.2. 载流子的俘获和弛豫

瞬态光致发光的上升时间 τ_r 可以提供载流子被量子点俘获和在量子点中弛豫的信息. 由于载流子在三维的 GaAs 和二维的量子阱中的热平衡和弛豫过程非常快^[12], 测定的上升时间主要反应载流子被量子点俘获的过程.

如图 5 所示, 量子点跃迁能量处光致发光的上升时间 τ_r 可以用如下公式拟合瞬态谱而得到^[13]:

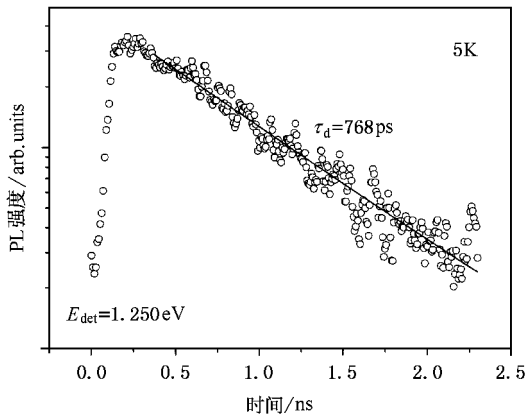


图2 亚单层 InGaAs/GaAs 量子点-量子阱结构中量子点态的光致发光瞬态谱(激发密度为 45W/cm². 图中拟合数据是用实线表示的)

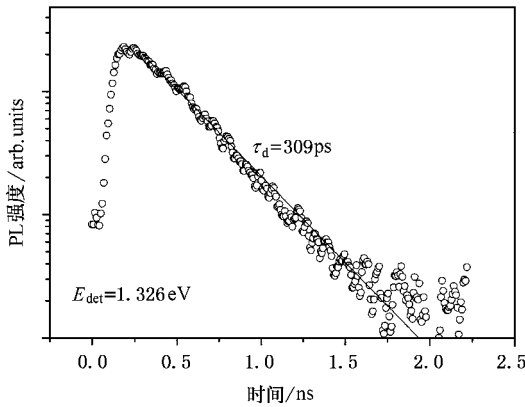


图3 亚单层 InGaAs/GaAs 量子点-量子阱结构中量子阱态的光致发光瞬态谱(激发密度为 224W/cm². 图中拟合数据是用实线表示的)

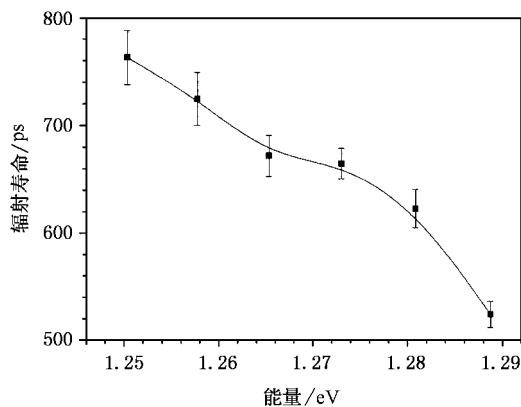


图4 亚单层 InGaAs/GaAs 量子点-量子阱结构中量子点的辐射寿命随量子点发射能量的变化(激发强度是 45W/cm²)

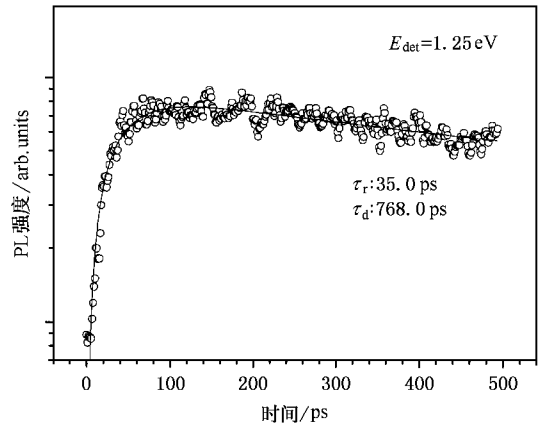


图5 为了测定上升时间在短时间范围内采集的光致发光瞬态谱(激发强度密度是 45W/cm². 图中实线表示拟合数据)

$$I(t) \propto [\exp(-t/\tau_r) - \exp(-t/\tau_d)] / (\tau_r - \tau_d), \quad (1)$$

其中 衰减时间 τ_d 可以从图 5 得出. 在 1.25 eV 处, 当激发强度密度为 45 W/cm² 时, 上升时间为 35 ps. 在我们所研究的体系中主要有两种俘获机理: 纵光学声学发射和库仑散射(俄歇过程). 两种机理的概率与量子阱中的载流子浓度有关, 当量子阱中的载流子浓度很低时, 俘获效率较低. 在载流子动力学中为了区分载流子-声子以及载流子-载流子散射的效应, 我们详细研究了光致发光的上升时间随激发强度的变化. 如图 6 所示, 我们观测到了两种不同的强度区域: 1) 当激发强度密度低于 110 W/cm² 时, 相应地, 一个脉冲在每 cm³ 中约产生 10¹¹ 个电子-空穴对, 光致发光上升时间几乎与激发强度密度无关; 2) 当激发强度密度高于 110 W/cm² 时, 随着激发强度密度的增加, 上升时间从 35ps 减小至 17ps. 这表明,

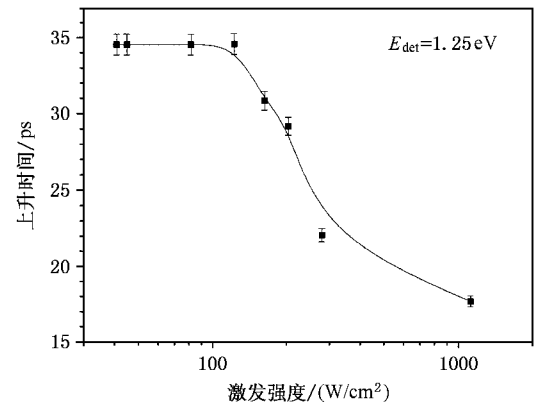


图6 亚单层 InGaAs/GaAs 量子点的光致发光上升时间随激发强度的变化

在高激发强度下,载流子之间的散射会加快量子点对载流子的俘获.在俄歇机理中,电子(或空穴)将其能量转移给另外一个势垒电子(或空穴)后,立即被量子点俘获.

4. 结 论

我们用低温时间分辨光致发光的方法研究了亚单层 InGaAs/GaAs 量子点-量子阱中的载流子动力学.结果表明,在激发强度密度下,在激发脉冲结束

之后产生的载流子密度远大于量子点密度时,量子阱的光致发光信号比量子点的信号强,可以观测到量子阱峰.量子点的辐射寿命随量子点尺寸的增大而增大,在 500 ps 至 800 ps 之间.量子点光致发光的上升时间强烈依赖于激发强度密度,在强激发条件下,上升时间减小至 17 ps,俄歇过程为主要的载流子俘获机理.在弱激发强度下,上升时间增加至 35 ps,纵光学声子发射为主要的载流子俘获机理.该结果对分析亚单层量子点器件的工作特性非常有意义,我们将另文发表.

-
- [1] Arakawa Y and Sakaki H 1982 *Appl. Phys. Lett.* **40** 939
- [2] Boucaud P and Sauvage S 2003 *C. R. Physique* **4** 1133
- [3] Mikhlin S S, Zhukov A E, Kovsh A R *et al* 2000 *Semicond. Sci. Technol.* **15** 1062
- [4] Zhukov A F, Kovsh A R, Mikhlin S S *et al* 1999 *Electron. Lett.* **35** 1845
- [5] Kovsh A R, Kovsh A R, Maleev N A *et al* 2003 *Microelectron. J.* **34** 491
- [6] Xu Z C, Leosson K, Birkedal D *et al* 2003 *Nanotechnology* **14** 1259
- [7] Xu Z C, Birkedal D, Hvam J M *et al* 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 3859
- [8] Xu Z C, Birkedal D, Juhl M *et al* 2004 *Appl. Phys. Lett.* , **85** 3259
- [9] Wang G, Fafard S, Leonard D *et al* 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 2815
- [10] Born H, Heitz R, Homann A and Bimberg D 2003 *Physica E* **13** 233
- [11] Sugawara M 1995 *Phys. Rev. B* **51** 10743
- [12] Shah J 1999 *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures, Solid-State Sciences* (Springer-Verlag, Berlin)
- [13] Uskov AV, Melnerney J, Adler F *et al* 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 58

Time-resolved photoluminescence of sub-monolayer InGaAs/GaAs quantum-dot-quantum-well heterostructures^{*}

Xu Zhang-Cheng^{1,2)†} Jia Guo-Zhi¹⁾ Sun Liang¹⁾ Yao Jiang-Hong¹⁾ Xu Jing-Jun¹⁾
J. M. Hvam²⁾ Wang Zhan-Guo^{1,2)}

¹⁾*Key Laboratory of Advanced Technique and Fabrication for Weak-Light Nonlinear Photonics Materials
(Ministry of Education), College of Physics & TEDA Applied Physics School, Nankai University, Tianjin 300457, China)*

²⁾*Research COM, Technical University of Denmark, Lyngby, DK-2800, Denmark)*

³⁾*Key Laboratory of Semiconductor Material Sciences, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)*

(Received 2 February 2005; revised manuscript received 14 March 2005)

Abstract

Time-resolved photoluminescence (PL) of sub-monolayer (SML) InGaAs/GaAs quantum-dot-quantum-well heterostructures was measured at 5 K for the first time. The radiative lifetime of SML quantum dots (QDs) increases from 500 ps to 800 ps with the increase of the size of QDs, which is related to the small confinement energy of the excitons inside SML QDs and the exciton transfer from smaller QDs to larger ones through tunneling. The rise time of quantum-dot state PL signal strongly depends on the excitation power density. At low excitation power density, the rise time is about 35 ps, the mechanism of carrier capture is dominated by the emission of longitudinal-optical phonons. At high excitation power density, the rise time decreases as the excitation density increases, and Auger process plays an important role in the carrier capture. These results are very useful for understanding the working properties of sub-monolayer quantum-dot devices.

Keywords: sub-monolayer, quantum-dot-quantum-well, time-resolved photoluminescence

PACC: 7320D, 7865P, 7855E, 7360F

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60444010, 60476042), Danish Research Council for Technical Science and the Start-up Fund from Personnel Division of Nankai University.

[†] E-mail: zcxu@nankai.edu.cn