

具有 InAlAs 浸润层的 InGaAs 量子点的制备和特性研究 *

朱天伟 张元常 徐 波 刘峰奇 王占国

(中国科学院半导体研究所半导体材料科学开放实验室,北京 100083)

(2002 年 11 月 14 日收到 2002 年 12 月 30 日收到修改稿)

采用自组装方法生长了一种新型的 InGaAs 量子点/InAlAs 浸润层结构。通过选取合适的 In 组分,使 InAlAs 浸润层的能级与 GaAs 势垒相当,从而使浸润层的量子阱特征消失。通过低温光致发光(PL)谱的测试分析得到 InGaAs 量子点/InAlAs 浸润层在样品中的确切位置。变温 PL 谱的研究显示,具有这种结构的量子点发光峰的半高全宽随温度上升出现展宽,这明显区别于普通 InGaAs 量子点半高全宽变窄的行为。这是因为采用了 InAlAs 浸润层后,不仅增强了对 InGaAs 量子点的限制作用,同时切断了载流子的转移通道,使得量子点更加孤立后表现出来的性质。

关键词 : InGaAs 量子点, InAlAs 浸润层, PL 谱

PACC : 7865, 7280E, 7360F

1. 引言

由于量子点波函数的局域化效应使得激子振荡强度提高,而且量子点具有 δ 函数分布的态密度,使得量子点结构在激光器、发光二极管、光探测器等光电子器件方面有着广泛的应用前景^[1]。理论预言,量子点激光器同量子阱激光器相比将具有更低的阈值电流,更高的微分增益和特征温度。因此,自组装量子点的制备及特性研究引起了人们的极大兴趣,除了时间分辨光谱用于量子点载流子弛豫机制的研究之外^[2,3],人们也利用变温光致发光(PL)谱对量子点发光的温度特性进行研究^[4-7],并在量子点间载流子弛豫和量子点发光猝灭方面取得了一些共识:随着温度的升高,载流子通过浸润层在量子点间转移,使得只有那些能态较低的大量子点对荧光有贡献,导致量子点的光谱半高全宽(FWHM)变窄和发光能量的红移。温度进一步升高,量子点中的载流子逐渐克服热势垒逃逸到浸润层或盖帽层中,并在那里进行辐射复合或非辐射复合,导致量子点发光强度很快猝灭。这些结果表明量子点之间是相互耦合

的,耦合的主要通道是浸润层,这种耦合一般将导致量子点器件工作波长的热稳定性变差。另外,由于浸润层中大量载流子的填充可能使量子点激光器的阈值电流增大,甚至使激射发生在浸润层而不是在量子点的能态上^[8]。以上表明浸润层所起的作用可能是负面的。我们知道,浸润层是二维结构,具有量子阱的特征,这很可能使之成为载流子的输运通道和中间能级,有理由认为提高浸润层的能级高度,不仅能使量子点之间的耦合作用减弱,从而使量子点更加孤立,更能体现量子点的本征特性,而且能提高量子点发光的猝灭温度。

本文采用自组装方法生长了一种新型量子点结构:InGaAs 量子点/InAlAs 浸润层/GaAs,即在 GaAs 衬底上先淀积 InAlAs 应变层,达到浸润层厚度时,停止 InAlAs 的生长;再淀积 InGaAs 形成量子点。采用合适的 In 组分,使 InAlAs 浸润层的能级和 GaAs 势垒相当,从而使浸润层的量子阱特征消失。变温 PL 谱表明,量子点的发光 FWHM 随温度升高而展宽,这明显不同于普通 InGaAs/GaAs 量子点 FWHM 变窄的行为。我们认为这是量子点之间载流子的转移通道被切断,量子点之间更加孤立的结果。

* 国家重点基础研究专项基金(批准号:G2000068303)、国家自然科学基金(批准号:60076024,90101002,90201033)、国家高技术研究发展计划(批准号:2002AA311070)和中国科学院知识创新重大项目(批准号:KJCX1-06-06)资助的课题。

2. 实验

样品是采用分子束外延方法在(001)偏(100)2°的GaAs衬底上生长的。有源区的生长分两步：首先利用束流的高斯分布，将衬底固定在偏离束流中心一定角度的位置，在衬底上得到一层厚度渐变的In_xAl_{1-x}As，为使InAlAs和GaAs具有相同的带宽，在考虑了应力作用的影响后，选取In组分x为0.6，然后恢复衬底旋转，在InAlAs上淀积厚度均匀的3个单原子层(ML)的InGaAs形成量子点，量子点的形成由反射高能电子衍射仪(RHEED)监控。InGaAs和InAlAs采用相同的In组分，使它们与GaAs衬底的失配系数一致。淀积InGaAs前所淀积的InAlAs已经积累了和淀积同量的InGaAs相当的应变能，并假定InGaAs在InAlAs应变层上的成岛和纯粹生长InGaAs的成岛机制相同。InAlAs和InGaAs的生长温度为520°C，生长速率为0.1ML/s。

PL测量采用氩离子514.5 nm线激发，液氮冷却的Ge探测器探测。样品放在He气循环低温系统的制冷头上，温度范围在10—300 K连续可调。

3. 结果及讨论

如图1所示，沿衬底片直径，从InAlAs层最厚点到最薄点等间距选取12个点，在15 K时测得它们的PL谱如图2。由图2看出，随着InAlAs厚度的增加，发光峰的能量位置先是红移(6b到3b)，当InAlAs厚度进一步增加时，发光峰转而蓝移(3b到1a)。Leon等^[9]的实验表明In_{0.6}Al_{0.4}As浸润层厚度在2—3ML之间，我们的样品中InAlAs最薄和最厚处的淀积量之差要大于2ML，因此在6b到1a之间必定存在某一点(3b)，其厚度恰好是浸润层的厚度。随后淀积的InGaAs完全参与成岛，而不再形成浸润层，如图1(a)所示。6b到3b之间的InAlAs厚度小于浸润层的厚度，在随后淀积的InGaAs中，还有一部分要继续形成浸润层，达到临界厚度后，InGaAs参与成岛。因此从6b到3b之间，InGaAs成岛部分的淀积量逐步增加，量子点尺寸也逐步增大。这对应于图2中6b到3b之间的峰位红移。3b到1a之间InAlAs的厚度要比浸润层厚，多余的InAlAs部分将和InGaAs层混合形成量子点。因为Al使材料的带隙增加，量子点的发光将随之蓝移，蓝移程度随

Al含量(即InAlAs)的增加而增大。这与图2中3b到1a之间的蓝移相对应。图1(b)和图1(c)分别给出了InGaAs量子点/InAlAs浸润层和普通的InGaAs量子点的结构及能带示意图。

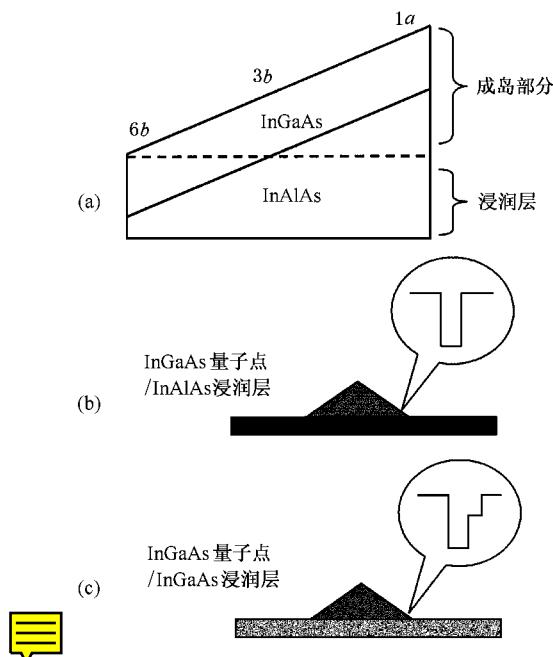


图1 (a)量子点有源区中InAlAs层厚度从6b到1a连续增加，在3b处InAlAs层刚好达到浸润层厚度 (b)和(c)分别为InGaAs量子点/InAlAs浸润层和普通的InGaAs量子点的结构及能带示意图

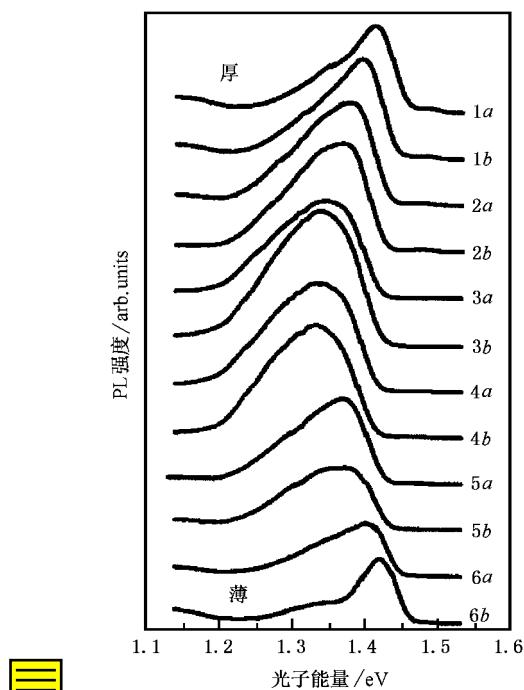
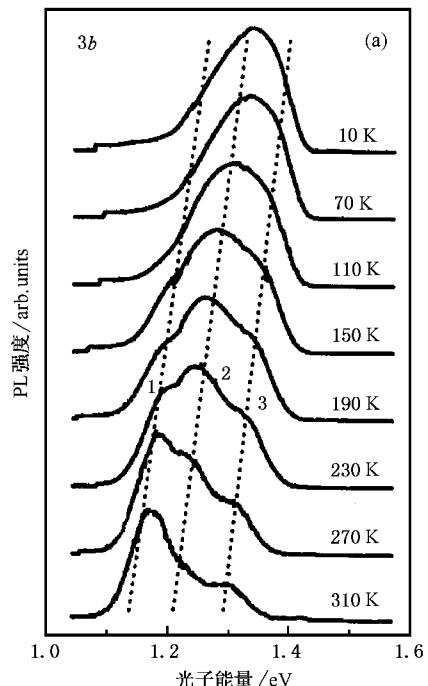
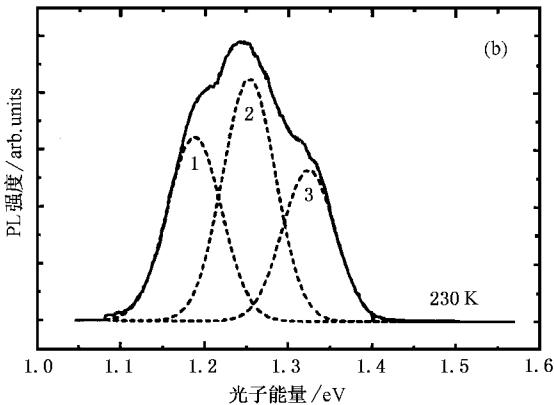


图2 15 K时样品不同位置的PL谱 InAlAs层由6b到1a逐渐变厚

将激光照在 3b 处,在 20 mW 的光激发下测量不同温度时的 PL 谱,结果如图 3(a)所示。随着温度的升高,样品呈现多峰结构,我们认为这是量子点的多模分布所致。对每一条谱线,用高斯分析拟合(如



光子能量/eV



光子能量/eV

图 3 样品 3b 处在 20 mW 功率激发下的变温 PL 谱(a)和 230 K 发光谱线的高斯拟合(b)

图 3(b))来确定 3 个发光峰的积分强度、能量位置和 FWHM,并在图 4 中给出它们随温度的变化关系。图 4(b)中的虚线给出的是 $In_x Ga_{1-x} As$ ($x = 0.6$) 体材料带隙随温度的变化关系^[10]。在图 4(a)中,随着温度的上升,峰 1 和峰 2 的 FWHM 先增大,当温度高于 130 K 后开始减小;而峰 3 的 FWHM 在整个温度范围内一直增大。在图 4(b)中,峰 3 的能量位置随温度的红移速度与 InGaAs 体材料的红移速度基本

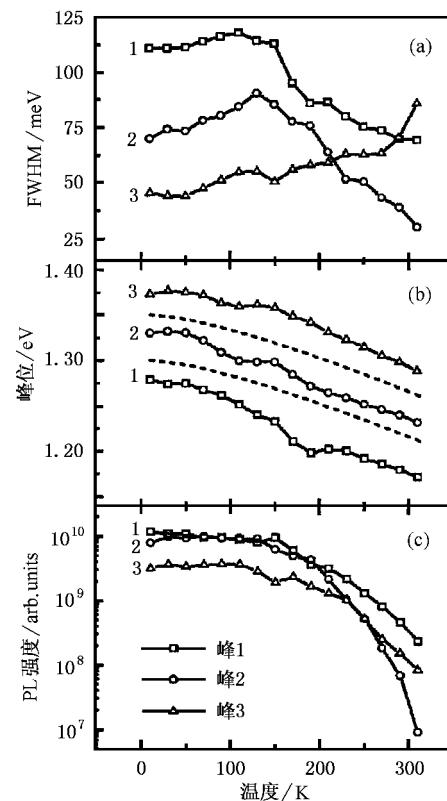


图 4 样品 3b 处量子点发光峰的 FWHM(a)、峰位(b)以及积分强度与温度的关系(c)

一致,而峰 1 和峰 2 的红移要明显快于峰 3,特别是在温度高于 130 K 时。我们注意到峰 1 和峰 2 的红移与 FWHM 的减小是同时发生的,这似乎可以用量子点之间载流子热转移模型来解释,但是这个模型不能解释在温度上升的初始阶段 3 个发光峰 FWHM 的增大现象。在我们的样品中 InGaAs 量子点的淬火层被 InAlAs 层所取代,淬火层辅助载流子转移模型不再适用,所以这一现象可能预示着别的机制的存在。

我们认为上述现象可能是由于量子点间的耦合减弱,量子点更加孤立表现出来的性质。关于低温时单量子点发光谱线的展宽,有两方面的原因:一是激子和声学声子通过变形势的耦合作用,并且这种耦合作用随量子点尺寸减小而增强^[11,12];二是随着量子点的尺寸减小,量子点晶格和限制层晶格之间的相互作用逐渐变得重要起来,存在于量子点和限制层交界处的缺陷态通过俘获载流子,使量子点和限制层组成的体系具有多个基态能级,这些态的散射作用使量子点激子发光出现均匀展宽^[13,14],对小量子点而言,这种与量子点周围环境有关的效应对激

子展宽的贡献可能超过激子与声学声子的耦合作用.对于我们的样品,两个低能峰1和2在10—130 K的展宽,可能主要取决于激子与声学声子的耦合作用.高能峰3在10—310 K持续展宽,可能是因为量子点尺寸较小而使与量子点周围环境有关的效应成为主要因素.

对普通的InGaAs/GaAs量子点,当温度高于130 K时,由于声学声子参与的电声散射作用^[15],FWHM的表现不是减小而是增大.在我们的样品中,因为InAlAs浸润层的带隙与GaAs势垒相同,载流子从小量子点热激发到浸润层,就等于到了GaAs势垒层,然后被辐射复合中心或非辐射复合中心俘获,而不是通过浸润层的横向输运转移到束缚能级深的大量子点中去.从图4(c)中当温度高于130 K时,量子点发光强度的明显减弱便可得到证明,这样的热过程导致了温度高于130 K时,峰1和峰2的红移和FWHM的减小同时发生.

4. 结 论

采用自组装方法得到了一种新型的量子点结构,在InAlAs浸润层上生长InGaAs量子点.采用合适的In组分,使InAlAs浸润层的能级与GaAs势垒相当,从而使浸润层的量子阱特征消失.在样品中,特别生长了有渐变厚度InAlAs层的量子点有源区来实现这种量子点新结构,并通过低温PL谱的测量分析得到了InGaAs量子点/InAlAs浸润层在样品中的确切位置.变温PL谱的研究显示,具有这种结构的量子点,发光峰的FWHM随温度升高出现展宽,这明显区别于普通InGaAs/GaAs量子点FWHM随温度升高变窄的行为.我们认为这源于InAlAs浸润层的采用,不仅增强了对InGaAs量子点的限制作用,同时切断了载流子的转移通道,使得量子点更加孤立后表现出的本质特性.

-
- [1] Jiang W H , Xu H Z , Gong Q et al 1999 *Acta Phys . Sin .* **48** 1451 (in Chinese) [姜卫红、许怀哲、龚谦等 1999 物理学报 **48** 1541]
 - [2] Yang W D , Lowe-Webb R R , Lee H et al 1995 *Phys . Rev . B* **56** 13314
 - [3] Wang G , Fafard S , Leondad D et al 1994 *Appl . Phys . Lett .* **64** 2815
 - [4] Yu H P , Lycett D , Roberts C et al 1996 *Appl . Phys . Lett .* **69** 4087
 - [5] Wu Y B , Arai K , Yao T 1996 *Phys . Rev . B* **53** R10485
 - [6] Polimeni A , Patane A , Henini M et al 1999 *Phys . Rev . B* **59** 5064
 - [7] Lu L W , Wang Z G 2002 *Acta Phys . Sin .* **51** 310 (in Chinese) [卢励吾、王占国 2002 物理学报 **51** 310]
 - [8] Fry P W , Harris L , Pamell S R et al 2000 *J . Appl . Phys .* **87** 615
 - [9] Leon R , Lobo C , Clark A 1998 *J . Appl . Phys .* **84** 248
 - [10] Paul S , Roy J B , Basu P K 1991 *J . Appl . Phys .* **69** 827
 - [11] Takagahara T 1993 *Phys . Rev . Lett .* **71** 3577
 - [12] Yakemoto K , Hyun B R , Masumoto Y 2000 *J . Lumin .* **87—89** 485
 - [13] Hyun B R , Furuya M , Yakemoto K et al 2000 *J . Lumin .* **87—89** 302
 - [14] Masumoto Y , Kawazoe T , Yamamoto T 1995 *Phys . Rev . B* **52** 4688
 - [15] Xu Z Y , Lu Z D , Yang X P et al 1996 *Phys . Rev . B* **54** 11528

Optical properties of InGaAs self-assembled quantum dots with InAlAs wetting layer^{*}

Zhu Tian-Wei Zhang Yuan-Chang Xu Bo Liu Feng-Qi Wang Zhan-Guo

(Key Laboratory of Semiconductor Materials Science , Institute of Semiconductors , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100083 , China)

(Received 14 November 2002 ; revised manuscript received 30 December 2002)

Abstract

A new self-assembled quantum dots system where InGaAs dots are formed on InAlAs wetting layer and embedded in GaAs matrix has been fabricated. The photoluminescence linewidth increases with increasing temperature , which is very different from normal In(Ga)As/GaAs quantum dots. The results are attributed to a higher energy of the wetting layer which breaks the carrier transfer channel between dots and keeps the dots more isolated from each other.

Keywords : InGaAs quantum dots , InAlAs wetting layer , photoluminescence spectra

PACC : 7865 , 7280E , 7360F

^{*} Project supported by the Special Foundation for State Major Basic Research Program of China (Grant No. G2000068303), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60076024 , 90101002 and 90201033), the National High Technology Development Program of China (Grant No. 2002AA311070) , and Major Project of Knowledge Innovation of Chinese Academy of Sciences (Grant No. KJCX1-06-06).